

T.C.
GEBZE YÜKSEK TEKNOLOJİ ENSTİTÜSÜ
MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

$A^3B^3C^6$ YARIİLETKEN
FERROELEKTRİKLERİN DİELEKTRİK
SPEKTROSKOPİ YÖNTEMİ İLE
İNCELENMESİ

Yakup BAKIŞ
DOKTORA TEZİ
FİZİK ANABİLİM DALI

GEBZE
2011

T.C.
GEBZE YÜKSEK TEKNOLOJİ ENSTİTÜSÜ
MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

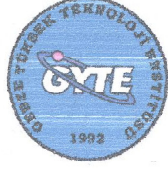
$A^3B^3C_2$ YARIİLETKEN
FERROELEKTRİKLERİN DİELEKTRİK
SPEKTROSKOPİ YÖNTEMİ İLE
İNCELENMESİ

Yakup BAKIŞ
DOKTORA TEZİ
FİZİK ANABİLİM DALI

TEZ DANIŞMANI
Prof. Dr. Rauf SÜLEYMANLI

GEBZE

2011



DOKTORA TEZİ JÜRİ ONAY SAYFASI

G.Y.T.E. Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun 17.06.2011..... tarih ve 2011/20 sayılı kararıyla oluşturulan jüri tarafından 14.07/2011. tarihinde tez savunma sınavı yapılan **Yakup BAKIŞ**'ın tez çalışması Fizik Anabilim Dalında DOKTORA tezi olarak kabul edilmiştir.

JÜRİ

ÜYE

(TEZ DANIŞMANI) : Prof.Dr Rauf SÜLEYMANLI

ÜYE

:Prof.Dr. Ferid SALEHLİ

ÜYE

:Doc.Dr. Mustafa ÖZDEMİR

ÜYE

:Prof.Dr. Faik MİKAILZADE

ÜYE

:Prof.Dr. Sait Eren SAN

ONAY

G.Y.T.E. Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun/...../20... tarih ve/..... sayılı kararı.

İMZA/MÜHÜR

ÖZET

TEZİN BAŞLIĞI: $A^3B^3C^6_2$ YARIİLETKEN FERROELEKTRİKLERİN DİELEKTRİK SPEKTROSKOPİ YÖNTEMİ İLE İNCELENMESİ

YAZAR ADI : YAKUP BAKIŞ

Geniş frekans (30Hz-13MHz) aralığında ve geniş sıcaklık aralığında (90K–420K) $TlInS_2$ ve $TlGaSe_2$ katmanlı ferroelektrik kristallerinin dielektrik özellikleri katmanlara dik ve paralel yönde incelenmiştir.

Her iki kristalde katmanlı yapıdan dolayı katmanlara paralel yöndeki iletkenliğin, katmanlara dik yöndeki iletkenlikten çok daha fazla olduğu tespit edilmiştir. Yine her iki kristalde de katmanlara paralel yönde iletkenliğin, faz geçişleri sıcaklıklarında maksimumdan geçtiği gözlemlendi. Ayrıca incelenen sıcaklık aralığında her iki kristalde faz geçişleri sıcaklıklarından yüksek sıcaklıklarda, katmanlara paralel yöndeki iletkenlik mekanizmasının katkılarla bağlı olan standart aktivasyon mekanizması olduğu belirlenerek kristallerin iletkenlik mekanizmaları tespit edilmiştir.

Katmanlara dik yönde yukarıda bahsedilen iletkenlik mekanizması sadece yüksek sıcaklıklarda gözlemlenmiştir. Bunlardan daha düşük olan sıcaklıklarda iletkenlik mekanizmasının atlama (hopping) mekanizması olduğu sonucuna varılmıştır. Bununla birlikte katmanlara dik yönde faz geçişlerine ait herhangi bir özellik gözlemlenmemiştir. Ayrıca $TlInS_2$ ve $TlGaSe_2$ kristallerinin kristal yapıları birbirine yakın olmasına rağmen katmanlara dik olan yönde iletkenliğin ve dielektrik sabitinin sıcaklıkla değişiminin çok farklı olduğu tespit edilmiştir.

Yukarıda belirtilen iletkenlik mekanizmaları dielektrik sabitlerinin (ϵ' , ϵ'') sıcaklığa ve frekansa bağlı olan davranışına yansımıştır. Yani her iki kristalde dielektrik sabitlerin davranışının esasen serbest yüklerle bağlı olduğu tespit edilmiştir. Aynı zamanda elektrik modülünün argand diyagramlarının elde edilmesi serbest yüklerin kutuplaşma mekanizmasında önemli rol oynadığı sonucuna varılmıştır. Bununla birlikte yüksek frekanslardaki A.C. iletkenliğin evrensel Jonscher

formülüne uygun olarak deęiřtięi tespit edilmiřtir. (yine TlGaSe₂ kristallerinin belli bir sıcaklık bölgesindeki davranıřı hariç)

Yapılan arařtırmalar sonucu her iki kristalde durulma zamanının sıcaklıkla deęiřimi her iki yönde de elde edilmiřtir. Katmanlara paralel olan yönde her iki kristalde faz geçiřlerine yakın noktalarda durulma zamanının özel davranıřı tespit edilmiřtir. Ancak bu durulma zamanının sıcaklıkla deęiřimi her iki kristalde Debye mekanizması ile deęil Vogel-Fulcher mekanizması ile açıklanması mümkün olmuř bunun sonucunda da bu kristallere ait literatürde ender rastlanan camsı geçiř sıcaklıkları tespit edilmiřtir.

TlInS₂ kristalinin dik yöndeki durulma zamanları elde edilmiřtir ancak bilinen bir davranıřa uymadıęı görölmüřtür. TlGaSe₂ kristalinin katmanlara dik yöndeki kutuplanma mekanizması Maxwell-Wagner modeli esasında açıklanmıř ve katmanlara dik olan yönde olan durulma zamanı Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan davranıřı tespit edilmiř ve bu davranıřın geleneksel faz geçiř bölgesinden uzak bir sıcaklık bölgesinde (145-175K) yeni bir faz geçiřine ait davranıř gözlenmiřtir. Yukarıda da belirttięimiz gibi TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara dik yönde yeni bir faz geçiřini olması düřüncesi ortaya konulmuřtur. Bu faz geçiřinin davranıřı tüm katmanlara dik yöndeki grafiklere yansımıřtır: 1- Gösterilen sıcaklık bölgesinde iletkenlięin sıcaklıkla davranıřında bir ‘çukur’ řeklinde kendini göstermiřtir. 2- Benzer çukur dielektrik sabitinin davranıřında da gözlenmiřtir. 3- Evren Jonscher ($\sigma \sim \omega^s$)S parametresinin keskin derecede aynı sıcaklık bölgesinde azalması tespit edilmiřtir. 4-TlGaSe₂ kristalinde yapılmıř olan Shotky bariyerlerin incelenmesinde aynı sıcaklık bölgesinde akım mekanizmalarının keskin bir řekilde deęiřmesi görölmüřtür.(Temperature-dependent polarity reversal)

Literatürde bulunan TlGaSe₂ kristaline ait farklı fiziksel parametrelerinin incelenmesi sonuçları ile birlikte aldıęımız sonuçların 145-175K sıcaklık bölgesinde yeni bir faz geçiřinin olması kanıtlanmıřtır.

SUMMARY

**THE TITLE OF THE THESIS: INVESTIGATION OF $A^3B^3C^6_2$
FERROELECTRICS SEMICONDUCTOR
WITH DIELECTRIC SPECTROSCOPY**

AUTHOR NAME :YAKUP BAKIŞ

Dielectric properties of $TlInS_2$ and $TlGaSe_2$ layer ferroelectric crystals in the direction perpendicular and parallel to layers were investigated in a wide frequency (30Hz-13MHz) range and a wide temperature range (90K-420K) .

It have been idintified that conductivity in the direction parallel to the layers is bigger than conductivity in the direction perpendicular to the layers in both crystal due to layered crystal structure. Again in both crystal, conductivity in the direction parallel to the layers, temperature for maximum occurrence of phase transitions were observed. In addition, the studied temperature range in both crystal at high temperatures that is phase transition temperatures, layers that are connected parallel to the direction conductivity contributions mechanism, the activation mechanism of the standard mechanisms that have been identified by determining the conductivity of the crystals.

The above-mentioned mechanism of conductivity in the direction perpendicular to the upper layers have been observed only at high temperatures. These lower temperatures, the mechanism of conductivity hopping concluded that the mechanism. However, any property belonging to the transition phase has been observed in the direction perpendicular to layers. Also $TlInS_2$ and $TlGaSe_2$ crystals and crystal structures, although close to each other layers in the direction perpendicular to the conductivity and dielectric constant with temperature variation was found to be very different.

Conductivity of the dielectric constants of the mechanisms mentioned above (ϵ' , ϵ'') depending on temperature and frequency, which is reflected in the behavior. In other words, the behavior of both crystal dielectric constants were found to be mainly due to free charges. Argand diagrams of electric modulus at the same time to

get loads of free polarization mechanism was concluded to play an important role. Nevertheless, the high frequencies A.C. Jonscher universal conductivity varies according to the formula has been found.

Relaxation time with temperature change as a result of studies of both crystal was obtained in both directions. The direction parallel to the upper layers of both crystal phase transition points close to the private behavior of relaxation time has been found. However, the mechanism of this relaxation time with temperature change in both crystal Debye not be explained by Vogel-Fulcher mechanism as a result, these crystals have been rare in the literature of the glass transition temperatures were determined.

TlInS₂ direction perpendicular to the crystalline relaxation times were obtained, but does not conform to a well-known behavior. Maxwell-Wagner polarization mechanism is the direction perpendicular to the crystalline TlGaSe₂ layers and layers of the model are explained on the basis of the relaxation time in the direction perpendicular to the Vogel-Fulcher behavior in accordance with the mechanism of this behavior have been defined and the traditional phase transition temperature in a remote region (145-175K) is a new phase transition of the observed behavior. As mentioned above, the passage of a new phase in the direction perpendicular TlGaSe₂ crystals layers have put forward the idea. This charts the direction perpendicular to the phase transition behavior is reflected in all layers: 1 - Showing in the temperature behavior of conductivity with temperature in a 'pit' has shown itself in the form. 2 - Similar pits have been observed in the behavior of the dielectric constant. 3 - The Universe Jonhscher ($\sigma \sim \omega^s$) S parameter to the same degree of sharp decrease in temperature was detected. Which is made of crystalline 4-TlGaSe₂ Shotky barriers in the same temperature as the study of mechanisms of flow was observed to change sharply. (Temperature-dependent polarity reversal)

The results of the examination of different physical paremetrelerinin TlGaSe₂ crystal found in the literature we received with the 145-175K temperature range of results has been proven to be a new phase transition.

TEŞEKKÜR

Tez çalışmamı hazırlarken benden emeğini, sabrını, bilgi ve tecrübelerini esirgemeyen değerli danışman hocam Prof. Dr. Rauf SÜLEYMANLI'ya şahsıma karşı gösterdiği anlayış, güven ve nezaket için teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmam süresince bilgi ve tecrübelerini benimle paylaşan, tez savunma jürimde bulunan değerli hocalarım Prof. Dr. Ferid SALEHLİ'ye ve Prof. Dr. MirHasan SEYİTSOY'ya özellikle deneysel yardımlarından dolayı ve değerli bilgilerini benimle paylaştıkları için şükranlarımı sunarım.

Tez savunma jürimde yer alan değerli Prof. Dr. Faik MİKAİLZADE, Prof. Dr. S. Eren SAN ve Doç. Dr. Mustafa Öztürk hocalarıma saygılarımla teşekkür ederim. ,

Tez çalışmamı okuyarak, uzun ve karmaşık cümlelerimin daha anlaşılır bir hale gelmesinde yardımlarını benden esirgemeyen Sümeyra İSTENGİR ,Nurcan DOĞAN ve Merve ERTAŞ arkadaşlarıma sonsuz teşekkür ederim.

Evliliğimizin ilk gününden beri benden desteğini hiç esirgemeyen değerli meslektaşım ve eşim Mukaddes BAKIŞ'a bana gösterdiği sevgi, anlayış ve değerli katkıları için minnettarlığımı sunar, sonsuz teşekkür ederim. Tez çalışmam sırasında, laboratuvar çalışmaları nedeniyle çok fazla ihmal ettiğim çocuklarım Utku Yusuf ve Yağmur Sıla'ya gösterdikleri sabırdan dolayı teşekkür ederim.

Dualarını benden esirgemeyen manevi annem Ayşe KANYILMAZ'a teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER DİZİNİ

	<u>Sayfa</u>
ÖZET	iv
SUMMARY	vi
TEŞEKKÜR	viii
İÇİNDEKİLER DİZİNİ	ix
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xiii
ŞEKİLLER DİZİNİ	xvi
1 GİRİŞ	1
2 TEMEL BİLGİLER	3
2.1 Dielektrik Spektroskopi Teorisi	3
2.1.1 Tanımlar ve Genel Bağlıntılar	3
2.1.1.1 Dielektrik Geçirgenlik ve Bağlı Dielektrik Geçirgenlik	3
2.1.1.2 Statik Elektrik Alan Altında Kutuplanma (Makroskobik Yaklaşım)	5
2.1.1.3 Dielektrik Spektroskopi Nedir?	7
2.1.2 Kutuplanma Mekanizmaları	9
2.1.2.1 Mikroskobik Yaklaşım	10
2.1.2.2 Elektronik Kutuplanma (Optik Kutuplanma)	11
2.1.2.3 İyonik (Atomik) Kutuplanma	20
2.1.2.1 Yönelme Kutuplanması (Dipol)	23
2.1.2.2 Ara Yüzey-Uzay Yük Kutuplanması	25
2.1.2.3 Atlama (Hopping) Kutuplanması	29
2.1.2.4 Kendiliğinden kutuplanma	32
2.1.3 Dielektriklerin Sınıflandırılması	34

2.1.3.1	Nonferroelektrik Maddeler	34
2.1.3.1.1	Apolar Maddeler	34
2.1.3.1.2	Polar Maddeler	35
2.1.3.1.3	Dipolar Maddeler	35
2.1.3.2	Ferroelektrik Maddeler	36
2.1.4	Dielektrik Durulma (Relaksasyon)	39
2.1.5	Durulma Zamanının Dağılım Fonksiyonları	41
2.1.5.1	Tek Durulma Zamanı Olan Sistemlerde Kutuplanma	43
2.1.6	Debye Denklemi	47
2.1.7	Dielektrik Spektroskopide Kullanılan Formalizmler	50
2.1.8	Debye Olmayan Durulma süreçleri	52
2.1.8.1	Cole-Cole Denklemi	52
2.1.8.2	Cole-Davidson Denklemi	53
2.1.8.3	Havriliak-Negami Denklemi	55
2.1.8.4	Fuoss-Kirkwood İfadesi	57
2.1.9	Elektriksel Modülü Formalizmi	59
2.1.9.1	Debye Denklemi	60
3	DİELEKTRİK SPEKTROSKOPİ YÖNTEMİ	62
3.1	Katmanlı $A^3B^3C^6_2$ Kristallerinin Üretim Teknolojileri ve Yapısı	62
3.2	Deneysel Düzenekler	64
3.3	Dielektrik Geçirgenliğin Hesaplanması	66
4	DENEYSEL SONUÇLAR VE DEĞERLENDİRMELER	67

4.1 TlInS ₂ Kristali İle İlgili Önceki Çalışmalarda Elde Edilen Bulgulara Genel Bir Bakış	67
--	----

4.1.1 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yönde Dielektrik spektroskopi Yöntemiyle İncelenmesi	70
--	----

4.1.1.1 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki A.C. İletkenliği	70
4.1.1.2 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu	77
4.1.1.3 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Cole –Cole Diyagramı	82
4.1.1.4 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Elektrik Modülünün Argand Diyagramları	85
4.1.1.5 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Durulma Zamanı	89

4.1.2 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yönde Dielektrik spektroskopi Yöntemiyle İncelenmesi	90
--	----

4.1.2.1 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki A.C İletkenliği	90
4.1.2.2 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu	99
4.1.2.3 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Cole- Cole Diyagramları	105
4.1.2.4 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları	107
4.1.2.5 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Durulma Zamanı	110

4.2 TlGaSe ₂ Kristali İle İlgili Önceki Çalışmalarda Elde Edilen Bulgulara Genel Bir Bakış	112
---	-----

4.2.1	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yönde Dielektrik spektroskopisi Yöntemiyle İncelenmesi	114
4.2.1.1	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki A.C. İletkenliği	115
4.2.1.2	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu	124
4.2.1.3	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Cole-Cole Diyagramı	128
4.2.1.4	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları	130
4.2.1.5	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Durulma Zamanı	133
4.2.2	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yönde Dielektrik spektroskopisi Yöntemiyle İncelenmesi	135
4.2.2.1	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki A.C İletkenliği	136
4.2.2.2	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu	141
4.2.2.3	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Cole-Cole Diyagramı	146
4.2.2.4	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları	148
4.2.2.5	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Durulma Zamanı	150
4.2.2.6	TlGaSe ₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki I-V Karakterizasyonu	153
	SONUÇ VE TARTIŞMALAR	157
	KAYNAKLAR	161
	ÖZGEÇMİŞ	169

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

A	: Kondansatör plakalarının yüzey alanı
A.C	: Alternatif akım
α	: Atomun kutuplanabilirliği
α_e	: Elektronik kutuplanabilirlik
α_i	: Atomik kutuplanabilirlik
α_o	: Yönelim kutuplanabilirliği
α_d	: Ara yüzey kutuplanabilirliği
C	: Karbon
Cl	: Klor
C_0	: Kondansatörün kapasitesi
C	: Sığa (kapasite)
D	: Kondansatör plakaları arası uzaklık.
D.C	: Doğru akım
D	: İndüksiyon
E	: Dış elektrik alan
E_{yer}	: Yerel elektrik alan
E_A	: Atlama geçişi için aktivasyon enerjisi.
$\Delta E'$: Uygulanan alan E alanının meydana getirdiği potansiyel engelin yükseklik farkı.
ϵ	: Dielektrik geçirgenlik
ϵ_0	: Boşluğun dielektrik geçirgenliği. ($8.85 \cdot 10^{-12}$ F/m)
ϵ_t	: Dielektrik geçirgenliğin anlık değeri
ϵ_{ij}	: Dielektrik geçirgenlik tensörü
ϵ_∞	: Dielektrik geçirgenliğin minimumu
ϵ^*	: Kompleks dielektrik geçirgenlik
ϵ_r	: Bağlı dielektrik geçirgenlik katsayısı.
ϵ'	: Dielektrik geçirgenliğin reel kısmı
ϵ''	: Dielektrik geçirgenliğin sanal kısmı

F_{net}	:Net Kuvvet
F_g	:Geri çağırıcı kuvvet
Ga	: Galyum
h	:Planck sabiti
H	:Hidrojen
In	: İndiyum
k	:Kuvvet sabiti
K	: Kelvin
χ	:Dielektrik duyunluk
χ_{ij}	:Dielektrik duyunluk tensörü
m	: Harmonik salıcının kütlesi
M	:Elektrik modülü
M^*	: Kompleks elektrik modülü
M'	:Elektrik modülünün gerçel kısmı
M''	: Elektrik modülünün sanal kısmıdisi
Na	:Sodyum
n	:Kırılma indisi
O	:Oksijen
P	: Polarizasyon
P_s	: Kendiliğinden kutuplama
P_0	: Etkileşimden önceki dipol moment
\vec{p}	: Dipol moment
\vec{p}_0	:Başlangıç durumundaki dipol moment
q	:Yük miktarı
Q	:toplam yük miktarı
\vec{r}	:Yer vektörü
R	:Elektron bulutunun yörünge yarıçapı
s	: Jonscher evrensel ölçeklendirme parametresi
S	:Sülfür
Se	: Selenyum
δ	: Oransızlık parametresi
σ_s	: Yüzeysel yük yoğunluğu
σ	: İletkenlik

σ'	: İletkenliğin gerçel kısmı
σ''	: İletkenliğin sanal kısmı
τ	: Durulma zamanı
T	: Sıcaklık
T_c	: Ferroelektrik faz geçiş sıcaklığı
T_i	: Oransız faz geçiş sıcaklığı
Tl	: Talyum
$\langle \vec{U} \rangle$: Dipol moment ortalama değeri
V	: Potansiyel fark
V	: Hacim
ω_0	: Elektronun doğal rezonans frekansı
ω	: Frekans
Y	: Admitans
Y^*	: Kompleks admitans
Z	: Empedans

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 Kapasitör	5
2.2 Yüklenmiş Kapasitör	5
2.3 Plakalar arası dielektrik madde ile dolu kondansatör	7
2.4 Çeşitli polarizasyon türlerinin dielektrik dispersiyonu [Knight and Nur,1987], [Çavuş,2006], [HP,1992]	8
2.5 Yerel alan etkisiyle elektron bulutunun pozitif yüklü çekirdeğe göre yer değiştirmesinden doğan kutuplanma. [Kao,2004]	12
2.6 Elektronik kutuplamada dielektrik sabitin frekansa bağıllığı [Hook,1998].	19
2.7 İyonik Kutuplanma (NaCl) [Çavuş,2006]	20
2.8 CO ₂ (a) ve H ₂ O (b) nun atomları arasındaki açılar. [Kao,2004]	24
2.9 Yönelim Kutuplanması. [Çavuş,2006]	25
2.10 Arayüzey –Uzay Yüğü Kutuplanması [Çavuş,2006]	26
2.11 Birim alana sahip iki paralel levha arasında farklı iki dielektrik malzeme [Kao,2004].	27
2.12 Bir çift kuyu potansiyel bariyeri [Kao,2004]	29
2.13 Dielektrik Polarizasyon özellikleri. Ferroelektrik malzemeler için Polarizasyonun tipik doğrusal ve histeresiz döngüsü.	37
2.14 Bir ferroelektrik malzemenin sıcaklık bağımlılığı [Chen et al,2004]	38
2.15 Elektrik alan değişiminin kutuplanmaya etkisi	40
2.16 Elektrik alan değişiminin kutuplanmaya etkisi	44
2.17 Polar bir dielektriğin dielektrik geçirgenliği [Raju,2003]	47
2.18 Tek durulma zamanlı sistemlerin Cole-Cole diyagramı [Raju,2003]	49
2.19 Cole-Cole ($\alpha=0.5$) ve Debye denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri	52
2.20 α parametrelili Cole-Cole denklemi için Cole-Cole diyagramı [Keleş ,2006]	53
2.21 Cole-Devidson ($\beta=0.5$) denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri	54
2.22 Cole- Devidson ($\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı	54
2.23 Havriliak-Negami ($\alpha=1/3$ $\beta=0.5$) denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri	56
2.24 Havriliak-Negami ($\alpha=1/3$ $\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı	56
2.25 Fuoss-Kirkwood($\alpha_{fk}=0.5$ α_{cc} $\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı	57

2.26 $\beta=0.5$ için Devidson-Cole (a), $\alpha=1/3$ $\beta=0.5$ Havriliak-Negami	58
3.1 Geniş bant dielektrik spektroskopisinde bant aralığına göre kullanılan metotlar	62
3.2 TIInS ₂ kristalinin yapısı [Henkel et al,1982]	63
3.3 Dielektrik ölçümlerinde kullanılan deney düzeneği şeması	64
3.4 I-V ölçümlerinde kullanılan deney düzeneği şeması	65
4.1 TIInS ₂ kristalinin faz geçiş diyagramı	67
4.2 TIInS ₂ kristalinin katmanlara paralel yönde 1 KHz frekanstaki ϵ' ve ϵ'' sıcaklık grafiği.[Salaev,1992]	69
4.3 TIInS ₂ kristalinin düşük frekans aralığında katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.	71
4.4 TIInS ₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.	73
4.5 TIInS ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(\omega)$ grafikleri.	75
4.6 TIInS ₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki s parametresinin sıcaklıkla değişim grafiği.	76
4.7 TIInS ₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(T)$ ve $\epsilon''(T)$ grafikleri.	79
4.8 TIInS ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(\omega)$ ve $\epsilon''(\omega)$ grafikleri	81
4.9 TIInS ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki Cole-Cole diyagramları.	83
4.10 TIInS ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki elektrik modülünün Argand diyagramları.	88
4.11 TIInS ₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki Elektrik modülünün argand diyagramları ve Cole-Cole diyagramlarının maksimumlarından elde edilen durulma zamanlarının sıcaklıkla davranışı.	89
4.12 TIInS ₂ kristalinde farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.	92
4.13 TIInS ₂ kristalinde düşük frekanslı katmanlara paralel yönde $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.	93
4.14 TIInS ₂ kristalinin Farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(\omega)$ grafikleri.	95
4.15 TIInS ₂ kristalinin katmanlara paralel yöndeki s değerinin sıcaklık fonksiyonu	98

4.16 TlInS ₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\varepsilon'(T)$ ve $\varepsilon''(T)$ grafikleri.	101
4.17 TlInS ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\varepsilon'(w)$ ve $\varepsilon''(w)$ grafikleri.	103
4.18 TlInS ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki Cole_Cole diyagramları.	106
4.19 TlInS ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki elektrik modülünün argand diyagramı.	109
4.20 TlInS ₂ Kristalinin Katmanlara paralel yöndeki argand diyagramlarından elde edilen $\tau(T)$ grafikleri	110
4.21 Oransız faza bağlı olan durulma zaman grafiği.	112
4.22 TlGaSe ₂ kristalinin faz geçişler diyagramı	113
4.23 TlGaSe ₂ kristalinde farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.	116
4.24 TlGaSe ₂ kristalinde düşük frekanslı katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.	117
4.25 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(w)$ grafikleri.	118
4.26 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(w)$ grafikleri.	119
4.27 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(w)$ grafikleri.	121
4.28 TlGaSe ₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki $\varepsilon_0\varepsilon/\sigma$ in 2KHz deki sıcaklık bağımlılığı.	122
4.29 TlGaSe ₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki yüksek frekans bölgesindeki $s(T)$ grafiği.	123
4.30 TlGaSe ₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\varepsilon'(T)$ ve $\varepsilon''(T)$ grafikleri.	126
4.31 TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\varepsilon'(w)$ ve $\varepsilon''(w)$ grafiği.	127
4.32 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki Cole-Cole diyagramları.	129

4.33 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki elektrik modülünün argand diyagramları.	131
4.34 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $M''(\omega)$ grafikleri.	132
4.35 TlGaSe ₂ kristallerinin katmanlara dik yöndeki $\tau(T)$ grafiği.	134
4.36 TlGaSe ₂ kristallerinin çeşitli frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.	137
4.37 TlGaSe ₂ kristalinde düşük frekanslı katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.	138
4.38 TlGaSe ₂ kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara paralel yöndeki $\sigma(\omega)$ grafikleri.	140
4.39 TlGaSe ₂ kristallerinin katmanlara paralel s parametresinin sıcaklığa bağımlılığı.	141
4.40 TlGaSe ₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\varepsilon'(\omega)$ ve $\varepsilon''(\omega)$ grafikleri.	144
4.41 TlGaSe ₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\varepsilon'(T)$ ve $\varepsilon''(T)$ grafikleri.	146
4.42 TlGaSe ₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak yüksek frekanslardaki Cole-Cole diyagramlarının sıcaklığa bağımlılığı.	147
4.43 TlGaSe ₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak elektrik modülünün argand diyagramlarının sıcaklığa bağımlılık grafikleri	149
4.44 TlGaSe ₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak Elektrik modülünün argand diyagramlarından hesaplanan $\tau(T)$ grafiği. [Salehli et al,2007]	151
4.45 TlGaSe ₂ kristalinin $\sigma_{\parallel} / \sigma_{\perp}$ oranı	152
4.46 Schottky eklemlili Au/TlGaSe ₂ kristalinin çeşitli sıcaklıklardaki I-V karakteristiği. [Seyidov,2010]	154

1 GİRİŞ

Katıhal fiziğinde dielektriklerin ve ferroelektriklerin elektriksel özelliklerinin araştırılması hem temel bilim, hem de teknoloji alanındaki uygulamalar açısından büyük öneme sahiptir. Ferroelektrik faz geçişlerinde meydana gelen kendiliğinden kutuplamanın oluşumu, gerek teknolojik uygulamalar gerekse temel bilim açısından oldukça ilgi çekici özelliklere sahiptir.

Teknolojideki ilerleme, çeşitli yarıiletken ve ferroelektrik maddelerden oluşturulan teknolojik elemanların geliştirilmesiyle yakından ilgilidir. Çağımızın en önemli çalışmaları olan bilgisayar ve fiber optik telekomünikasyon sistemlerindeki çeşitli mikro elektronik ve optoelektronik cihazların hesaplama, hafıza depolama ve iletişim gibi uygulamalarının en önemli bileşenleri yarıiletkenler ve ferroelektriklerle ilgilidir. Ferroelektrik ince filmler, ferroelektrik hafızalar ve piezoelektrik aygıtlar bunlardan bazılarıdır. Metal elektrotlar arasında sandviç yapı oluşturacak şekilde konumlandırılan ferroelektrik ince filmler ile FeRAM' lar (ferroelectric random access memories) hafıza ortamı olarak geliştirilmiştir. FeRAM' lar kararlı hafızalar olup, bir güç kaynağı olmadan da bilgiyi saklayabilme özelliğine sahiptir [Parlaktürk,2007].

Dielektrik ölçümler gıda bilimi, kimya, biyoloji, tıp, ilaç araştırmaları, nanoteknoloji, askeri savunma, elektronik, malzeme bilimi, tarım gibi pek çok alanda malzemenin yapısal, elektriksel, safsızlık gibi özelliklerinin araştırılmasında yaygın olarak kullanılmaktadır. Maddelerin dielektrik özellikleri nem, kimyasal yoğunluk, biokütle, hacim yoğunluğu, kusurlar, kimyasal reaksiyonlar, mekanik gerilme, sıcaklık ve diğer fiziksel şartlara bağlı olarak değişmektedir [Çavuş,2006]

Son yıllarda yapılan araştırmalarda $A^3B^3C^6$ yarıiletken ferroelektrik kristallerde ardışık ferroelektrik faz geçişlerinin ortaya konması bu kristal ailesine duyulan ilgiyi daha da arttırmıştır. Özellikle oransız fazın oluşumu ile sıcaklık, optik ışınlar, elektrik alan, basınç gibi etkilere karşı aşırı duyarlı davranması ve termik elektrik hafıza gibi özelliklerin belirlenmesi ilginin odak noktası olmuştur. Ardışık faz geçişlerinin yanı sıra ferroelektrik durumda farklı kutuplanmış fazlardaki

bölgelerin bir arada bulunması son zamanlarda ortaya konan bir diğer ilginç bir özelliktir.

Tezin amacı katmanlı $A^3B^3C^6_2$ yarıiletken ferroelektriklerin, geniş bir sıcaklık aralığında dielektrik özelliğinin dielektrik spektroskopisi yöntemi ile incelenerek kutuplamaya ait durulma zamanlarının elde edilmesi ve meydana gelen kutuplanma mekanizmasının işleyişinin ortaya konmasıdır.

Araştırmalar sonunda elde edilen sonuçlar, bu kristalin ferroelektrik fazın özellikleri, durulma zamanı etkileri, dış etkenlere bağımlılık oranı, kristal yapının saflığı hakkında önemli bilgiler edinmeye imkân sağlayacaktır. Dielektrik spektrumları belirleyen, kristalin A.C. iletkenliğidir. Dolayısıyla bu kristallerde katmanlara paralel ve dik yönde A.C. iletkenliğinin sıcaklık fonksiyonunun spektral değişimlerinin incelenmesi bu tür kristallerin sahip olduğu dielektrik özelliklerin sıcaklık bağımlılığını açıklamaktadır.

2 TEMEL BİLGİLER

2.1 Dielektrik Spektroskopi Teorisi

2.1.1 Tanımlar ve Genel Bağıntılar

2.1.1.1 Dielektrik Geçirgenlik ve Bağlı Dielektrik Geçirgenlik

Dışarıdan bir elektrik alan uygulandığında, iletkenliği engelleyen ve yüzeyinde yük depolayabilen maddelere dielektrik madde denir. Dielektrik özelliğini belirlemeye yarayan parametreye de **dielektrik (sabit) geçirgenlik** adı verilir. Bu katsayı her maddede farklı değer alır.

Elektrostatikte İzotropik veya kübik yapıdaki bir ortamın boşluğa göre dielektrik geçirgenliği ϵ , elektrik alan \vec{E} ve **ortamın dipol moment yoğunluğu olan** (birim hacimdeki dipol momentlerin bir hücre boyutundaki ortalama değeri) \vec{P} **polarizasyonu** cinsinden şöyle tanımlanır.

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} = \epsilon\vec{E} \quad (\text{CGS}) \quad \vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P} = \epsilon\epsilon_0\vec{E} \quad (\text{SI}) \quad (2.1)$$

Elipsoit bir yapıya uygulanan düzgün bir E_0 elektrik alan düzgün bir kutuplanmaya yol açar. Makroskopik bir parametre olan dielektrik uygunluk (alınanlık) katsayısı χ şöyle tanımlanır:

$$\vec{P} = \chi\vec{E} \quad (\text{CGS}) \quad \vec{P} = \epsilon_0\chi\vec{E} \quad (\text{SI}) \quad (2.2)$$

Duygunluk χ ile dielektrik geçirgenlik ϵ arasındaki bağlantı (2.1) ve (2.2) eşitlikleri kullanılarak

$$\epsilon = \frac{D}{E} = \frac{E + 4\pi P}{E} = 1 + 4\pi\chi \quad (\text{CGS}) \quad \epsilon = \frac{D}{E} = \frac{\epsilon_0 E + P}{\epsilon_0 E} = 1 + \chi \quad (\text{SI}) \quad (2.3)$$

$$\chi = \frac{P}{E} = \frac{\epsilon - 1}{4\pi} \quad (\text{CGS}) \quad \chi = \frac{P}{\epsilon_0 E} = \epsilon - 1 \quad (\text{SI}) \quad (2.4)$$

elde edilir. Kübik olmayan bir kristalin dielektrik yanıtı için duygunluk tensörü veya dielektrik geçirgenlik tensörü kullanılır:

$$P_i = \chi_{ij} E_j; \quad \epsilon_{ij} = \delta_{ij} + 4\pi\chi_{ij} \quad [\text{KITTEL}, 1953] \quad (2.5)$$

Dielektrik teorisinin oluşumunun ilk yıllarında \mathcal{E} için **dielektrik sabit** terimi kullanılmıştır. Ancak yapılan çalışmaların sonucunda bu ifadenin çokta uygun olmadığı anlaşılmıştır. Çünkü dielektrik sabit frekans, sıcaklık, yerel alanlar, uygulanan alanın şiddeti, yük taşıyıcılarının bulunması ve yerel alan bozulmaları gibi faktörlere bağlıdır. Bu yüzden ϵ_r için “**dielektrik geçirgenlik**” ifadesini kullanmanın daha doğru olduğu düşünülmektedir. Bizde bu tezde “dielektrik geçirgenlik” ifadesini kullanacağız. [Kaya and Fang ,1997], . [KELES,2006]

Dielektrik geçirgenlik yukarıdaki tanımlardan da anlaşılacağı üzere elektrik alan etkisinde, dielektrik maddenin kutuplanabilirliğinin (kutuplanmanın) bir ölçüsüdür. ϵ ile gösterilen dielektrik geçirgenlik aslında boşluğun dielektrik geçirgenliği ve malzemenin bağlı dielektrik geçirgenliği olmak üzere iki bileşenden oluşur. Hesaplamalarda kolaylık sağlamak için her malzemenin dielektrik geçirgenliğinin (ϵ), boşluğun (vakum) dielektrik geçirgenliğine (ϵ_0) ,bölünmesi ile elde edilir. Elde edilen yeni katsayıya **bağlı dielektrik (sabit) geçirgenlik** ϵ_r adı verilir ve birden büyük bir sayıdır.

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (2.6)$$

Burada ; ϵ_0 boşluğun dielektrik geçirgenliği olup $8.85 \cdot 10^{-12}$ F/m dir. [Knight]

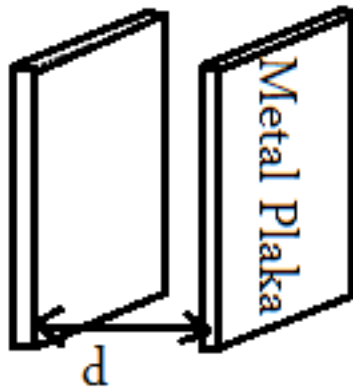
Bağlı dielektrik geçirgenlik, bir dielektriğin dielektrik geçirgenliğinin boşluğun dielektrik geçirgenliğinin kaç katı olduğunu gösterir. [Kwaha and Enyinna,2009]

Elektrik alan etkisindeki malzemenin içerisindeki elektronların ve atomların konumları elektrik alanına bağlı olarak değişir ve böylece elektrik yük merkezleri kayacağından elektriksel kutuplanma meydana gelir. Oluşan elektriksel dipoller yüzeyde yük birikimine sebep olur. Dielektrik özellik iki elektrik yük arasındaki elektrostatik kuvveti azaltan bir parametredir. Yük transferini engellediklerinden dolayı elektrik devrelerinde yalıtkan olarak kullanılırlar. [İyibakanlar ve Oktay,2007] [Parlaktürk,2007].

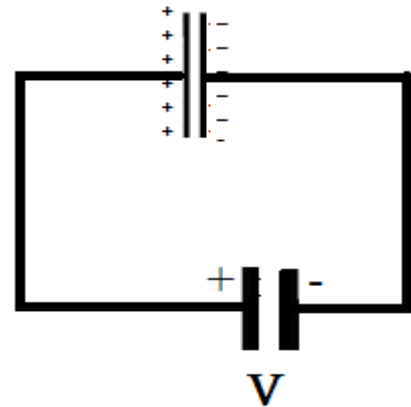
2.1.1.2 Statik Elektrik Alan Altında Kutuplanma (Makroskobik Yaklaşım)

Şimdi bağıl dielektrik geçirgenliğin daha anlaşılır hale getirmek için basit bir kondansatör modeli ele alalım.

Şekil 2.2 deki gibi paralel iki metal plaka arasında bir yalıtkan (dielektrik) malzeme (burada hava) konur levhalara Şekil 2.3 deki gibi üretcin iki ucu bağlanarak plakalarda $+Q$ ve $-Q$ yük biriktirmesi sağlanabilir. Daha sonra üreteç devreden alınsa bile depolanan yük burada kalır. Böyle paralel iki metal plaka arasına bir yalıtkan konarak elektrik yükü depolamaya yarayan cihazlara kondansatör veya kapasitör denir. [Rolf,2000]



Şekil 2.1 Kapasitör



Şekil 2.2 Yüklenmiş Kapasitör

Yüzey alanı A , plakalar arası uzaklık d ve boşluğun dielektrik geçirgenliği ϵ_0 alınırsa paralel levhaların geometrik kapasitesi, Gauss kanununu uygularsak

$$\oint E \cdot dA = \frac{Q}{\epsilon_0}$$

$$E \cdot A = \frac{Q}{\epsilon_0}$$

$$E = \frac{Q}{\epsilon_0 A} \quad \sigma_s = \frac{Q}{A}$$

$$E = \frac{\sigma_s}{\epsilon_0} \quad (1)$$

$$V_{ba} = -\int_a^b E \cdot dl = \frac{Q}{\epsilon_0 A} \int_a^b dl \quad V_{ba} = \frac{Qd}{\epsilon_0 A}$$

σ_s yüzeysel yük yoğunluğudur. Burada biriken yük miktarı öncelikle üreticinin potansiyel farkıyla (V) doğru orantılıdır. Biz bu orantıyı eşitlik şeklinde yazacak olursak

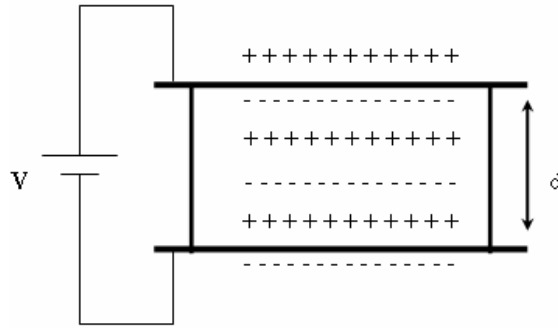
$Q = C_0 V$ şeklinde yazabiliriz.

Buradaki C_0 orantı sabitine kondansatörün kapasitesi (sığası) denir ve birimi, yük başına düşen volt olan farad (F) dır. Elbette biriken yük miktarı levhaların yüzeyinin büyüklüğü ile doğru orantılıdır. Ayrıca levhaların birbirine yakın olması + ve - yüklerin birbirini daha çok çekmesi ile daha çok yük birikmesi sağlanabilir. Bunlar geometrik faktörlerdir ve cihazın yapısal sabitleridir. [Bueche,2004]

$$V_{ba} = \frac{Qd}{\epsilon_0 A} \text{ y1 da kullanarak}$$

$$C_0 = \frac{Q}{V} = \frac{\epsilon_0 A}{d} \text{ elde edilir.} \quad (2.7)$$

Şimdi de kondansatörün plakaları arasında bağıl dielektrik geçirgenliği yüksek bir yalıtkan (dielektrik) madde koyalım. Bu durumda plakaların arasındaki boşluk olması durumundaki ile aynı potansiyel fark için daha fazla yük depolanır. Yani kondansatörün kapasitesi birimsiz ϵ çarpanı kadar artar. Bu ϵ çarpanına yalıtkanın dielektrik geçirgenliği denir. Şekil 2.4'te paralel plakaları arasında dielektrik madde konmuş kondansatörün şematik gösterimi görülmektedir. Buna göre dielektrikli kondansatörün kapasitesi



Şekil 2.3 Plakalar arası dielektrik madde ile dolu kondansatör

$$C = \epsilon C_0$$

$$C = \epsilon \epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (2.8)$$

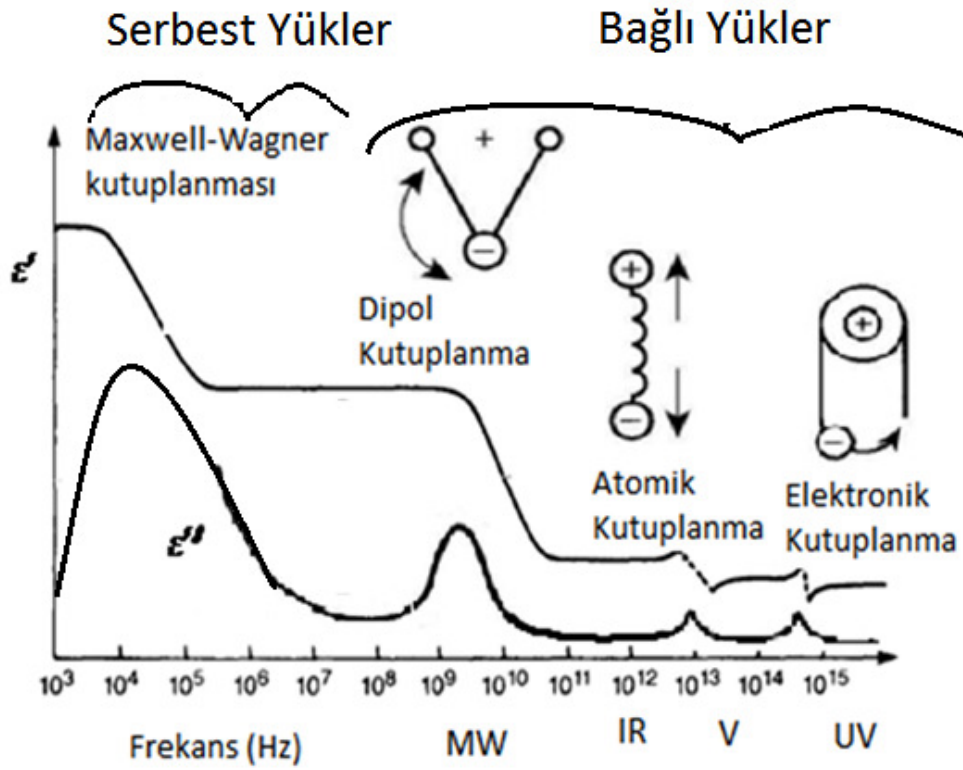
(C_0 malzemenin yapısına bağlı sabitlerden oluşmaktadır) olacaktır. [Parlaktürk ,2007]

2.1.1.3 Dielektrik Spektroskopi Nedir?

Dielektrik spektroskopi, maddenin elektrik alana verdiği tepkinin frekansın fonksiyonu olarak belirlenmesidir. Diğer bir ifadeyle, dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısmının frekans bağımlılığının elde edilmesine dielektrik spektroskopi denir. Dielektrik spektroskopi malzemelerin elektriksel özelliklerini belirlemenin yöntemlerinden biridir. Bunun için malzemeye mümkün olduğu kadar küçük genlikli

bir A.C. sinyal uygulanır ve frekansa bağlı olarak iletkenliği ve kapasitesi ölçülerek dielektrik geçirgenliğin frekans bağımlılığı belirlenir.

Dielektrik malzemeye zamana bağlı olarak değişken A.C bir elektrik alan uygulandığında dielektrik geçirgenliği kompleks bir değer alır. Kompleks dielektrik geçirgenlik $\epsilon^* = \epsilon' - i\epsilon''$ olarak yazılabilir. Burada ϵ' reel kısmı ϵ'' ise sanal kısmını göstermektedir. ϵ' dielektrik maddenin kutuplanma miktarının bir ölçüsüdür ve elektrik enerjisini depolayabilme özelliği yani kapasite olarak adlandırılırken, ϵ'' kayıp faktörü ise elektromanyetik enerjinin soğrulması ve dağılım yolu ile ısı enerjisine çevrilmesi (iletkenlik) olarak tanımlanır.



Şekil 2.4 Çeşitli polarizasyon türlerinin dielektrik dispersiyonu [Knight and Nur,1987], [Çavuş,2006], [HP,1992]

Kutuplanmanın oluşma mekanizmaları birkaç türlü olmakla birlikte, her bir tür kendine özgü karakteristik rezonans frekansına sahiptir. Bu frekans bölgeleri Şekil 2.5 de görülmektedir. Şekil de görüldüğü gibi teorik olarak 10^3 den 10^{15} Hz e kadar olan frekans bölgesi elektrona bağlı kutuplanma bölgesidir. 10^{13} Hz nin altında atomik (iyonik) kutuplanmadan gelen bir katkı vardır. Polar moleküle sahip

maddelerde 10^{10} Hz in altında frekans bölgesinde ise dipol kutuplanmadan katkı gelmektedir. 10^5 Hz in altındaki bölgede Maxwell- Wagner olarak adlandırılan çeşitli tipte yük kutuplanmaları meydana gelmektedir.(Maxwell,1891; Wagner, 1914) [Knight and Nur,1987]

Dielektrik maddelerin elektriksel özellikleri genellikle dielektrik sabitleri cinsinden ifade edilir. Bir dielektrik malzemenin dielektrik geçirgenliği sıcaklık ile değişmekte ve frekans arttıkça azalmaktadır.

Özetlenecek olursa dielektrik kayıplar, kutuplanma türlerine bağlıdır. Yüzey yük kutuplanmasından kaynaklanan dielektrik kayıplar 10^4 Hz civarında, dipol kutuplanmasından kaynaklanan dielektrik kayıplar 10^8 Hz civarında, atomik kutuplanmasından kaynaklanan dielektrik kayıplar 10^{12} Hz civarında ve elektronik kutuplanmasından kaynaklanan dielektrik kayıplar 10^{16} Hz civarında meydana gelir.

2.1.2 Kutuplanma Mekanizmaları

Elektrik alan etkisi ile dipollerin sınırlı mesafede konum değiştirmesi ve yönleneşine dielektrik kutuplanması denilmektedir ve kutuplanmanın 6 temel mekanizması vardır.

- Elektronik kutuplanma
- İyonik (Atomik) kutuplanma
- Yönelme kutuplanması (Dipol kutuplanma)
- Arayüzey veya Uzay yük kutuplanma
- Atlamalı (hopping) Kutuplanma
- Kendiliğinden kutuplanma [Kao,2004]

Kutuplanmaya elektronik katkı, elektron kabuklarının çekirdeğe göre yer değiştirmesinden kaynaklanır. İyonik katkı, çok atomlu bir molekülün atomlarının ya da iyonlarının birbirine göre yer değiştirmesi sonucu oluşur (örgü titreşimi olarak ortaya çıkar). Dipol kutuplanma, kalıcı dipol momenti olan moleküllerin dış elektrik alan etkisi ile yön değiştirmesi sonucu oluşur. Yüksek yoğunlukta yük bulunan

maddelerde ara yüzlerdeki yük geçişleri polarizasyona sebep olur. Arayüzey kutuplanma, ara yüzlerde yük birikimi sonucu meydana gelir.

Hem elektronik hem iyonik kutuplanma, esas olarak elektron bulutlarının elektrik alan etkisiyle yer değiştirmesi ve örgü titreşimlerinden kaynaklanmaktadır dolayısıyla molekül içi olaylardır. Molekül içi olaylardaki söz konusu kuvvetler sıcaklığa çok bağlı olmadığından dolayı elektronik ve iyonik kutuplanmada sıcaklığa çok bağlı değildir. Yönelim kutuplanması bir dönme işlemidir bu yüzden sadece ısısal titreşimin sebep olduğu dirence değil, aynı zamanda çevredeki moleküllerin eylemsizliklerinin sebep olduğu mekanik sürtünmeye maruz kalır. Bu durum tıpkı viskozitesi yüksek bir sıvıda bir topun dönmesine benzer. Dış kuvvet(elektrik alan) kaldırıldığında dipol denge konumuna gelmek isteyecektir. Bu sürece durulma (relaksasyon) süreci denir. Tüm bu etkileşimlerden dolayı bu yönelim kutuplanması sıcaklığa oldukça bağlıdır.

2.1.2.1 Mikroskobik Yaklaşım

Kutuplanma (P) dielektrik davranışı ifade eden birim hacimdeki toplam elektrik dipol momente denir. Kutuplanma elektrik yüklerinin simetrik bir dağılımdan simetrik olmayan bir dağılıma yer değiştirmesidir.

$\langle \vec{u} \rangle$ dipol moment ortalama değeridir

$$\langle \vec{u} \rangle = q\delta = \alpha \vec{E}_{yer} \text{ şeklinde verilir}$$

Burada α atomun kutuplanabilirliğidir yani mikroskobik bir parametredir. Eğer maddenin yapıtaşı (atom veya molekül) izotropik ise α skaler bir niceliktir ve $\langle \vec{u} \rangle$, E ile aynı yöndedir. Eğer anizotropik ise bu kalıcı kutuplanmadan dolayı $\langle \vec{u} \rangle$, E ile tamamen aynı yönde değildir ve α bir tensördür.

Nitekim maddenin toplam kutuplanabilirliği α tüm kutuplanabilirlik türlerinin bileşenlerini içerir.

$$\alpha = \alpha_e + \alpha_i + \alpha_o + \alpha_d \quad (2.9)$$

Buradaki $\alpha_e, \alpha_i, \alpha_o, \alpha_d$ sırasıyla elektronik, atomik, yönelim ve arayüzey kutuplanabilirlikleridir. Ayrıca ferroelektrik maddeler için kendiliğinden kutuplanma olarak adlandırılan bir bileşen daha içerir. [Kao 2004]

Atomlar kübik simetriye sahipse makroskopik ve mikroskobik parametreler arasındaki bağıntıyı içeren bir bağıntı olarak

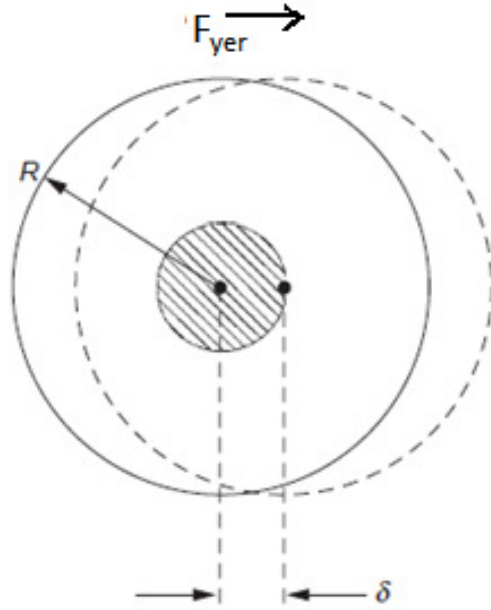
$$\frac{\chi}{\chi+3} = \frac{\varepsilon-1}{\varepsilon+2} = \frac{1}{3\varepsilon_0} \sum_{i=1}^N \alpha_i \quad (2.10)$$

Clausius-Mossotti bağıntısı verilebilir. Tüm bu kutuplanma türleri kendine özgü bir biçimde zamana bağlı olarak gerçekleşir. Bundan sonraki bölümde bu kutuplanma türleri tek tek incelenecektir.

2.1.2.2 Elektronik Kutuplanma (Optik Kutuplanma)

Nötr atomda pozitif yükler çekirdekte bulunurken, negatif yüklü elektronlar çekirdeğin çevresine dağılmış durumdadır. Dış elektrik alan uygulandığında, çekirdek alan yönünde bir kuvvete maruz kalırken elektronları zıt yönde bir kuvvet etkiler. Pozitif ve negatif yüklerin zıt yönde yer değiştirmesi, iki yük merkezinin birbirini çekmesi sonucunda dengeye ulaştığında ortaya çıkan indüklenmiş momente elektronik kutuplanma denir [Chen et al,2004].

Elektron kutuplanması yalıtkan malzemelerin hepsinde görülmektedir. Bu tip kutuplanma 10^{-13} - 10^{-15} s gibi çok kısa durulma (yumuşama) zamanına sahiptir ve bu zaman aralığı elektromanyetik spektrumda görünür bölge ya da ultra-viole frekans bölgesindedir (10^{15} Hz).



Şekil 2.5 Yerel alan etkisiyle elektron bulutunun pozitif yüklü çekirdeğe göre yer değiştirmesinden doğan kutuplanma. [Kao,2004]

Elektronik kutuplanmada meydana gelen dielektrik kaybı oldukça azdır. Buda ısınmaya çok az katkı sağlar. İyonik yapılmayan dielektriklerde yalnızca elektronik kutuplanma oluşur ve optik kırılma indisi $n^2 = \epsilon_r$ dir. Buna Maxwell ilişkisi denmektedir. [Parlaktürk,2007] Optik frekans bölgesindeki dielektrik geçirgenlik neredeyse tümüyle elektronik kutuplanmanın katkısından gelir. Yüksek frekanslarda iyonik ve dipol katkı, iyon ve moleküllerin yüksek eylemsizliği nedeni ile küçük olur.

Kutuplanabilirlik α_e atom numarasına ve atomun en dış yörüngedeki elektron sayısına bağlıdır. Soy gazların en dış yörüngesi tam doludur. Bu da çekirdeği, uygulanan elektrik alanın etkisinden gizler. Bu yüzden en düşük kutuplanma soy gazlarda meydana gelir. En yüksek kutuplanmaya ise en dış yörüngesinde bir elektron olan 1A grubu elementleri sahiptir.

α_e yi matematiksel olarak hesaplamak için şöyle bir model ele alınabilir: Serbest bir atomun elektron bulutunun yükünü $-Zq$ kabul edilsin. Bu yükün tamamı R yarıçaplı bir küreye düzgün dağılmış ve yük merkezi ile kürenin merkezi çakışık olsun. Uygulanan sabit dış E alanın şiddetine bağlı olarak Şekil 2.6 daki gibi elektron

bulutunu δ kadar kaydığında coulomb kuvveti bu elektron bulutunu geri çağıracaktır. Gauss kanununa göre columb kuvveti yalnız bu elektron bulutuna etkiyecektir.

Burada küre içinde kalan yük ve geri çağırıcı elektrik alan

$$Q = -Zq \frac{\frac{4}{3}\pi\delta^3}{\frac{4}{3}\pi R^3} = -Zq \frac{\delta^3}{R^3} \quad (2.11)$$

$$E = \frac{-Zq \frac{\delta^3}{R^3}}{4\pi\epsilon_0 \delta^2} = \frac{-Zq\delta}{4\pi\epsilon_0 R^3} \quad \text{ve } E + E_{yer} = 0 \quad (2.12)$$

meydana gelen dipol moment

$$p = -Ze\delta = -4\pi\epsilon_0 R^3 E_{yer} = \alpha_e E \quad (2.13)$$

$\alpha_e = 4\pi\epsilon_0 R^3 = 3\epsilon_0 V$ burada V atomun hacmidir. Görüldüğü gibi elektronik kutuplanabilirlik α_e boşluğun dielektrik geçirgenliğinin hacimle çarpımının üç katı çıktı.

Burada sabit D.C. bir elektrik alan ele aldık, şimdide zamanla değişen A.C. bir elektrik akımı göz önüne alarak inceleyelim. Bunun için atomu etkileyen yerel alanın zamana göre değişken olduğu kabul edilecek ve Bohr modeli kullanılacaktır.

$$\vec{E}_{yer} = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$$

Bohr modelinde düzgün dağılmış R yarıçaplı yörüngede dolanan elektron bulutu dış elektrik alan altında \vec{r} kadar yer değiştirdiğinde denge noktasına geri dönmek isteyecektir. Bu geri çağırıcı kuvvet \vec{r} ile orantılıdır. Bu geri çağırıcı kuvvet ve çevresinde dolandığı çekirdekle olan etkileşimi sonucu elektronun davranışı doğal titreşim frekansı ω_0 olan bir harmonik salınıcı biçiminde olacaktır. Bu salınıcının elektron sayısı Z yüklü e, kütlesi m ve kuvvet sabiti k;

$$k = m\omega_0^2$$

Elektron bulutunun denge durumundan yer deđiřtirmesi dıř alana bađlı olarak

$$\vec{r} = \vec{r}_0 e^{-i\omega t}$$

řeklinde olan salınıcı olarak dūřünüldüđünde elektron bulutunun üzerindeki net kuvvet \vec{F}_{net} ; geri çağırıcı kuvvetle \vec{F}_g elektrik alanının oluřturduđu \vec{F}_e kuvvetlerin (kolaylık olması için yerel alanla dıř alanı řimdilik eřit alınırsa) vektörel toplamıdır.

$$\vec{F}_{net} = \vec{F}_g + \vec{F}_e$$

$$\vec{F}_e = \vec{E}e = \frac{-Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r^2} \vec{r} = \frac{-Ze^2}{4\pi\epsilon_0 R^3} \vec{r} \text{ řeklinde olacaktır.}$$

$$\vec{F}_e = k\vec{r} = m\omega_0^2 \vec{r} = \frac{-Ze^2}{4\pi\epsilon_0 R^3} \vec{r} \text{ dönüřümü yapılırsa}$$

$\omega_0 = \sqrt{\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 mR^3}}$ bu da Bohr atom modelimizin atomun parametrelerine bađlı dođal rezonans frekansıdır.

Bu durumdaki elektron bulutunun hareket eřitliđi 2.14 deki gibi ifade edilir.

$$m\vec{r}'' = -m\omega_0^2 \vec{r} - Ze\vec{E}_{yer} \quad (2.14)$$

\vec{E}_{yer} ve \vec{r} yi 2.14 de yerleřtirirsek ve türevlerden sonra sadeleřtirmeleri yaparsak sonuđa

$$\vec{r}_0 = -\frac{Ze\vec{E}_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2)} \text{ elde ederiz.} \quad (2.15)$$

Alan etkisi ile oluşan dipol momenti; $\vec{p} = -e\vec{r}$. Bu durumda

$$\vec{p} = \vec{p}_0 e^{-i\omega t} \quad p_0 = \frac{Ze^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2)} \vec{E}_0 \quad \vec{p}_0 = \alpha_e(\omega) \vec{E}_0 \quad (2.16)$$

Olur. Buradan frekansa bağlı elektronik kutuplanabilirlik 2.17 deki gibi belirlenir.

$$\alpha_e(\omega) = \frac{Ze^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2)} \quad (2.17)$$

Elektrik alanın frekansı optik frekanslardan çok küçük olduğu durumlarda yani $\omega \ll \omega_0$ olduğunda kutuplanabilirlik ($\omega \cong 0$ için statik elektronik kutuplanabilirlik) frekansa bağımlı değildir.

$$\alpha_e = \frac{Ze^2}{m\omega_0^2}$$

Bohr modeline göre yörüngede dolanan elektronun potansiyel enerjisi

$$E = \hbar\omega_0 = \frac{me^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^2} \quad (2.18)$$

ile verilir. Ve temel seviyedeki durum için Bohr yarıçapı

$$R = \frac{4\pi\epsilon_0 \hbar^2}{me^2} \text{ şeklindedir.}$$

$$\alpha_e = \frac{Ze^2}{m\omega_0^2} = \frac{Ze^2}{m \left(\frac{me^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^3} \right)^2} = \frac{Z(4\pi\epsilon_0)(4\pi\epsilon_0)^3 \hbar^6}{m^3 e^6} \quad Z=1 \text{ için}$$

$$\alpha_e = 4\pi\epsilon_0 R^3 = 3\epsilon_0 V \text{ elde edilir. [Kao,2004] , [Hook and Hall,1998]}$$

Buradan ω_0 frekansı m, e, ϵ_0 ve h nin bilinen değerleri yerine konarak hesaplanırsa değerinin ultraviyole (morötesi) frekanslar civarında olduğu görünür. Bu yüzden uygulanan dış alanın frekansı görünür bölgeden çok düşük olduğunda α_e 'nin frekansa bağımlılığının çok zayıf olduğu görülür.

Elektronik polarizabilite değeri deneysel olarak kırılma indis ölçümleri ve Clausius-Mossotti bağıntısı ile 2.17 eşitliğine göre $\omega \rightarrow \omega_0$ olduğunda $\alpha \rightarrow \infty$ bulunabilir. Ancak gerçekte hiçbir zaman $\epsilon \rightarrow \infty$ olmuyor. Bunun nedeni ω_0 çevresinde dielektrik kayıpların, ışımaya ve esnek olmayan çarpışma ile ilgili enerji kayıplarının olmasıdır. Bu yüzden sönümlü bir titreşim olması için kayıpları ifade eden bir terimi eşitliğe dâhil etmeliyiz. Bu terimi sürtünme kuvveti olarak düşünebiliriz. Böyle durumlarda sürtünme kuvveti tıpkı serbest düşen cisme etki eden kuvvet gibi V hızı ile doğru orantılıdır. Sürtünme katsayısı (veya dispersiyon sabiti) olarak γ alırsak aynı zamanda daha önce elde ettiğimiz

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 m R^3}}$$
 dönüşümünü de 2.14 eşitliğini ilave edersek böylece

$$m\vec{r}'' + m\gamma\vec{r}' + m\omega_0^2\vec{r} = -e\vec{E}_{yer} \quad (2.19)$$

\vec{E}_{yer} ve \vec{r} yerine koyar ve türevlerden sonra sadeleştirmeleri yaparsak sonuçta

$$\vec{r}_0 = -\frac{e\vec{E}_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$
 şeklinde olur. Böylece yukarıda yaptığımız gibi indüklenen

dipol momentten yola çıkarak elektronik kutuplanma olur.

$$\alpha_e = \frac{e^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)} \quad (2.20)$$

Reel ve sanal kısımları ayırırsak;

$$\alpha_e(\omega) = \frac{e^2(\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma)}{m[(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]} \quad (2.21)$$

$$\alpha_e(\omega) = \frac{e^2(\omega_0^2 - \omega^2)}{m[(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]} + i \frac{e^2\omega\gamma}{m[(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]} \quad (2.22)$$

şeklinde elektronik kutuplanabilirlik elde edilir. Bu sonuca $E=E_{\text{yer}}$ kabul etmekle ulaşılmıştır. Ancak yerel alan için Lorentz bağıntısını dikkate alsak, o zaman Clausius-Mossotti bağıntısı kullanılacaktır. Clausius-Mossotti eşitliğinden:

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = \frac{1}{3\varepsilon_0} \sum_i N_i \alpha_i = \frac{N}{3\varepsilon_0} \alpha$$

$$3\varepsilon_0(\varepsilon - 1) = N\alpha(\varepsilon + 2) = N\alpha(\varepsilon - 1 + 3)$$

$$(3\varepsilon_0 - N\alpha) \cdot (\varepsilon - 1) = 3\alpha N$$

$$\varepsilon = 1 + \frac{3\alpha N}{3\varepsilon_0 - N\alpha} = 1 + \frac{N}{\frac{\varepsilon_0}{\alpha} - \frac{N}{3}}$$

$$P = (\varepsilon - 1)\varepsilon_0 E \text{ idi}$$

$$P = \frac{NE}{\frac{1}{\alpha} - \frac{N}{3\varepsilon_0}}$$

elektronik kutuplanma elde edilir.

Dielektrik geçirgenlik reel ve sanal kısımlarına ayrılırsa aşağıdaki ifade elde edilir.

$$\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon'' = 1 + \frac{e^2 N}{\varepsilon_0 m (\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega) - (e^2 N/3)}$$

Buradan paydanın reel kısmını sıfır yapan değerde rezoransa geleceğinden paydayı 0 a eşitlersek

$$\varepsilon_0 m (\omega_0^2 - \omega^2) - (e^2 N/3) = 0$$

$$\omega_1 = \left[\omega_0^2 - \frac{e^2 N}{3\varepsilon_0 m} \right]^{1/2} \quad (2.23)$$

elde edilir. Buradan da çok sayıda elektron sisteminin etkisi ile rezonans frekansının değerinin azaldığı görülebilir: Sonuçta dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısımları için

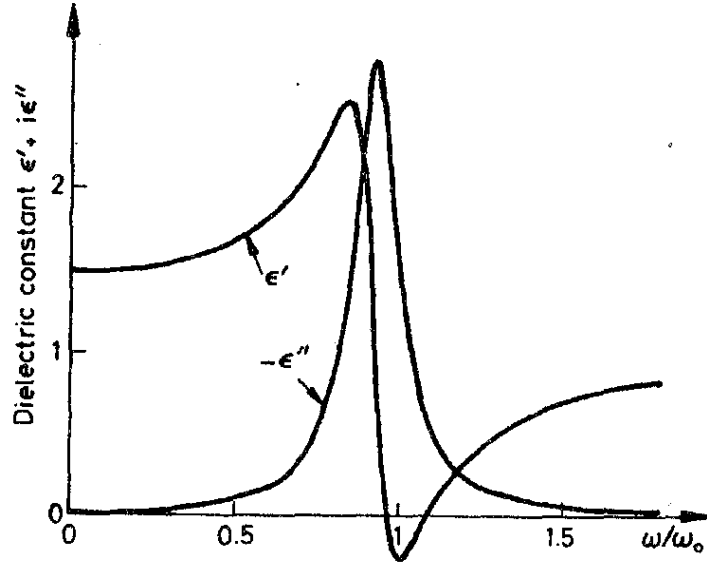
$$\varepsilon_1' = 1 + \left(\frac{e^2 N}{m\varepsilon_0} \right) \frac{(\omega_1^2 - \omega^2)}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2} \quad (2.24)$$

$$\varepsilon_1'' = \left(\frac{e^2 N}{m\varepsilon_0} \right) \frac{\gamma\omega}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2} \quad (2.25)$$

yazabiliriz: Bu sonuçlara göre elde edilen dielektrik geçirgenliğin sonuçtaki davranışını Şekil 2.6 göstermektedir. Şekil de görüldüğü gibi zayıf sönüm için atomun tepkisi ω_0 frekansında keskin bir rezonanstır. Alçak frekanslarda, $\omega \ll \omega_0$, reel kısım ε_1' , görüldüğü gibi neredeyse frekanstan bağımsız bir durgun değere doğru yönelir. Yüksek frekanslarda $\omega_0 \ll \omega$ ($\omega_1 = 0$ alırsak)

$$\varepsilon_1' = 1 - \frac{e^2 N}{m\varepsilon_0 (\omega^2 + \gamma^2 \omega^2)} \quad (2.26)$$

olarak verildiği gibi aşağıdan bire doğru yönelir. Burada s birim hacimdeki atomların sayısıdır. Yüksek frekanslarda serbest elektronların dielektrik geçirgenliği 2.26 eşitliği gibidir.



Şekil 2.6 Elektronik kutuplamada dielektrik sabitin frekansa bağlılığı [Hook,1998].

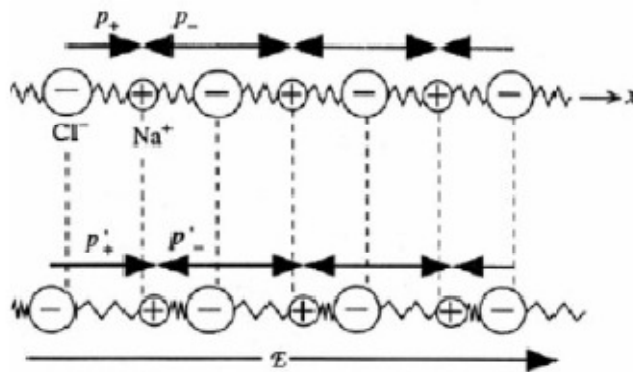
Bu da yüksek frekanslarda bütün malzemeler için elektronların serbest parçacıklar gibi davrandığına işaret eder. Dielektrik geçirgenliğin ϵ'' sanal kısmındaki keskin tepe ω_0 'ın komşuluğunda olan enerjinin rezonans soğurmasını yansıtır.

Şekil 2.7 , 2.24 ve 2.25 eşitlikleri ile belirlendiği gibi, dielektrik geçirgenliğin reel ve sanal kısımları ϵ' ve ϵ'' nün frekansla değişimi Clausius-Mossotti ifadesi elektronik kutuplanmayla dielektrik geçirgenlik arasında bir ilişki kurmak için kullanılmıştır. Bu ifadede tertip edilen yerel alan düzeltmesi frekansının hemen altında olacak soğurmadaki ϵ'' tepeye neden olur. ϵ' 'mın negatif olduğu frekans bölgesinde kristal üzerine düşen dalgalar tamamen dışarıdan yansıtılırlar, [Hook,1998], [Kao,2004].

2.1.2.3 İyonik (Atomik) Kutuplanma

Moleküller farklı tip atomlardan meydana geldiğinden, bu atomların elektronları simetrik olarak dağılmayacaktır. Yani, elektron bulutlarının yük merkezleri bağları daha kuvvetli olan atomlara doğru kayacaktır. Böylece atomlar zıt kutuplara sahip olurlar ve bu yüklere etkiyen bir dış elektrik alan, atomların denge konumlarını değiştirecektir. Dış alan altında iyonlaşmış atomların denge konumlarından sapmalarıyla oluşan indüklenmiş dipol momente “İyonik (Atomik) Kutuplanma” denir. Elektronik kutuplanmaya benzer fakat elektronik kutuplanmadan yaklaşık yüz kat daha yavaştır. İyonik kutuplanma için 10^{-13} - 10^{-12} sn gibi bir süre yeterlidir. 10^{10} Hz in altındaki frekans bandında yapılan bütün ölçümlerde meydana gelir. Bu frekans bölgesi spektrumda kızıl ötesi bölgeye tekabül etmektedir. Bu kutuplanmada Maxwell ilişkisi geçerli değildir. Burada bağıl dielektrik katsayısı her zaman optik kırılma indisinin karesinden büyük olacaktır ($n^2 < \epsilon_r$). İyonik kutuplanmada da dielektrik kayıp az olduğundan ısınmaya katkısı da az olacaktır [Parlaktürk,2007]

İyonik (Atomik) kutuplanma da pozitif ve negatif iyonlar zamana göre değişen elektrik alanının etkisi ile titreşim hareketleri yaparlar. Bu olaya bir çift pozitif ve negatif iyondan oluşan dipollerin titreşim hareketi Lorentz salıncı modeli olarak da tanımlanır. Pozitif ve negatif iyonların değişken elektrik alan etkisi altındaki hareket eşitlikleri:



Şekil 2.7 İyonik Kutuplanma (NaCl) [Çavuş,2006]

$$m_+ \frac{d^2 \vec{r}_+}{dt^2} = -k(\vec{r}_+ - \vec{r}_-) + e\vec{E}_{yer}$$

$$m_- \frac{d^2 \vec{r}_-}{dt^2} = -k(\vec{r}_- - \vec{r}_+) - e\vec{E}_{yer}$$

$$\frac{d^2 \vec{r}_+}{dt^2} = -\frac{k}{m_+}(\vec{r}_+ - \vec{r}_-) + \frac{e}{m_+} \vec{E}_{yer}$$

$$\frac{d^2 \vec{r}_-}{dt^2} = -\frac{k}{m_-}(\vec{r}_- - \vec{r}_+) - \frac{e}{m_-} \vec{E}_{yer}$$

$$\frac{d^2(\vec{r}_+ - \vec{r}_-)}{dt^2} = -\frac{k}{m_+}(\vec{r}_+ - \vec{r}_-) + \frac{k}{m_-}(\vec{r}_- - \vec{r}_+) + \frac{e}{m_+} \vec{E}_{yer} + \frac{e}{m_-} \vec{E}_{yer}$$

$$\frac{d^2(\vec{r}_+ - \vec{r}_-)}{dt^2} = -k(\vec{r}_+ - \vec{r}_-)\left(\frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-}\right) + e\vec{E}_{yer}\left(\frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-}\right)$$

Şeklinde olur. Pozitif ve negatif iyonların birbirlerine göre nispi yer değiştirmesi

$\vec{u} = \vec{r}_+ - \vec{r}_-$ şeklindedir. Sistemin etkin kütlelerini $\frac{1}{M} = \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-}$ tanımlarsak bu

eşitliklerden:

$$\frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} = \frac{e}{M} \vec{E}_{yer} - \frac{k}{M} \vec{u}$$

\vec{E}_{yer} uygulanan zamana bağlı elektrik alandan dolayı

$$\vec{E}_{yer} = \vec{E}_0 e^{-i\omega t} \text{ dır}$$

Ayrıca bu diferansiyel eşitliğin çözümü $\vec{u} = \vec{u}_0 e^{-i\omega t}$ şeklinde olmalıdır. Bunu denklemden yerine koyup çözersek.

$$-\omega^2 \vec{u}_0 e^{-i\omega t} = \frac{e}{M} \vec{E}_0 e^{-i\omega t} - \frac{k}{M} \vec{u}_0 e^{-i\omega t}$$

$$\vec{u}_0 \left(\frac{k}{M} - \omega^2 \right) = \frac{e}{M} \vec{E}_0$$

$$\vec{u}_0 = \frac{\frac{e}{M} \vec{E}_0}{\left(\frac{k}{M} - \omega^2\right)} \text{ ve } \vec{\omega}^{-2} = \frac{k}{M}$$

kabul edersek O zaman;

$$\vec{u} = \frac{(e \vec{E}_0 / M) \cdot e^{-i\alpha}}{\vec{\omega}^{-2} - \omega^2};$$

Burada dipollerin ortamla etkileşiminden doğan dispersiyon sabitini dâhil edersek:

$$\frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} + \gamma \frac{d\vec{u}}{dt} = \frac{e}{M} \vec{E}_{yer} - \frac{k}{M} \vec{u}$$

Bu eşitliğin çözümü aynı yolu izleyerek:

$$\vec{u} = \frac{e \vec{E} / M}{\vec{\omega}^{-2} - \omega^2 - i\gamma\omega} \text{ şeklinde olur.}$$

$$\vec{p} = -e\vec{r}$$

$$\vec{p} = \frac{e^2 \vec{E} / M}{\vec{\omega}^{-2} - \omega^2 - i\gamma\omega} = \vec{p}_0 e^{-i\alpha}$$

$$\text{Burada, } \vec{p}_0 = \frac{e^2 \vec{E}_0 / M}{\vec{\omega}^{-2} - \omega^2 - i\gamma\omega}$$

ve sonuçta iyonik kutuplanabilirlik:

$$\alpha_i = \frac{\vec{p}_0}{\vec{E}_0} = \frac{e^2}{M \left(\vec{\omega}^{-2} - \omega^2 - i\gamma\omega \right)} \quad (2.27)$$

Buradan iyonik kutuplanabilirliğin şeklinin elektronik kutuplanabilirliğinki ile aynısı olduğu anlaşılır. Bu durumda kutuplanma ve dielektrik geçirgenlikte aynı olacaktır. Zaten iyonik kutuplanma ile elektronik kutuplanma arasındaki ayrım kesin bir sınır yoktur çünkü iyonların hareketi aslında aynı zamanda her zaman

elektronların bir hareketi olduğu unutulmamalıdır. Tek fark elektronun ω_0 frekansının ($\omega_0^2 = \frac{k}{m}$), iyonik salılımın $\bar{\omega}$ frekansından 10^3 kat daha büyük olmasıdır. Çünkü iyonun kütlesinin (M) elektronun kütlesinin (m) 1000 katıdır. Bu nedenle iyonik kutuplanabilirliğin frekansa bağımlılık bölgesi kızıl ötesi ve görünür bölgedir [Kao,2004].

Neticede $\alpha_i(\omega)$ için:

$$\alpha_i = \alpha_i' + \alpha_i'' = \frac{e^2}{M} \frac{\bar{\omega}^2 - \omega^2 + i\gamma\omega}{(\bar{\omega}^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2} \quad (2.28)$$

yazabiliriz. Bu durumda toplam kutuplanabilirlik

$$\alpha = \alpha^{+e} + \alpha^{-e} + \alpha^i \quad (2.29)$$

α^i ve α^i'' eğrileri resimde görülmüyor. $\omega < \bar{\omega}$ olduğunda $\alpha^i > 0$, yani \vec{p} ile \vec{E}_{yer} aynı fazdalar ve $\alpha^i \approx const$ (normal dispersiyon). α^i - nin $\bar{\omega}$ çevresindeki davranışı

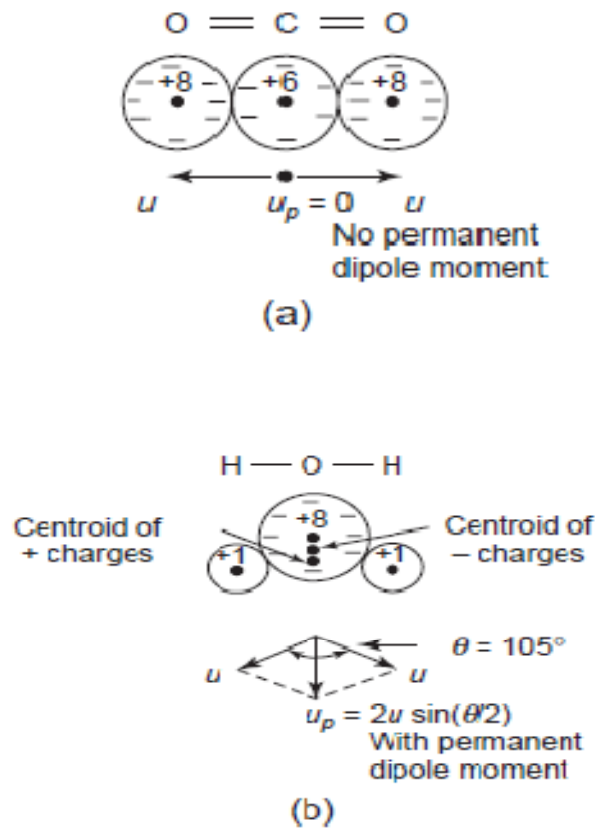
anormal dispersiyon olarak adlandırılıyor. $\omega > \bar{\omega}$ olduğunda $\alpha^i < 0$ ve \vec{p} ile \vec{E}_{yer} ters fazdadırlar. Çok yüksek frekanslarda ise iyonlar elektrik alanına yetişemiyorlar.

2.1.2.1 Yönelme Kutuplanması (Dipol)

İlk olarak bazı moleküllerin niçin kalıcı dipol momente sahip olup bazılarının olmadığını açıklayalım. İki atomlu bir molekül düşünelim bir atom diğer atoma valans elektronlarından verdiği farklı yüklere sahip iki atom oluşur. Bu iyonik bağlı yapı bir kalıcı kutuplanma meydana getirebilir. Ancak NaCl gibi yüksek simetriye sahip yapılarda oluşan dipollerin vektörel toplamı sıfır olabilir. Kalıcı dipol momenti olmayan bir molekül olarak CO₂ verilebilir şekil 2.8a' da görüldüğü gibi

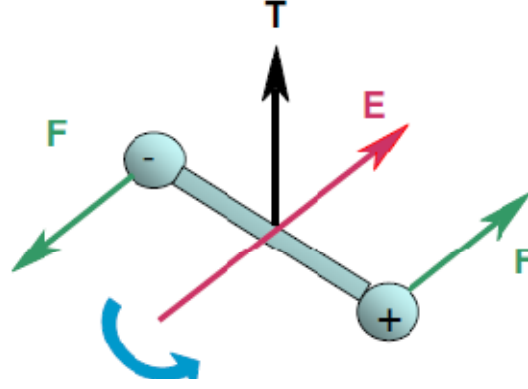
oksijen atomları karbon atomuna 180° açıyla bağlı olduklarından toplam vektörel dipol moment sıfırdır.

Ancak H_2O molekülünde Şekil 2.8b 'de görüldüğü gibi H atomları O atomuna 180° den farklı bir açıyla geldiğinden bir polarizasyon oluşur. Yani kalıcı kutuplanma molekülerin yapısıyla ilgili olduğu gibi kristal örgünün simetrisine de bağlıdır. Şekil 2.9 daki gibi elektrik alan uygulandığında dipollerde bir tork meydana gelir ve dipolleri elektrik alan doğrultusunda yönelmesine zorlar.



Şekil 2.8 CO_2 (a) ve H_2O (b) nun atomları arasındaki açıları. [Kao,2004]

Fakat ısısal titreşimler dipollerin rastgele yönelmesine sebep olacaktır. Ancak bu dipol topluluğu istatistiksel olarak giderek yarı bir dengeye ulaşacaktır. Yönelimsel polarizasyon hesaplama yöntemi ilk Langevin tarafından para manyetik maddelerde kalıcı manyetik momentlerin hesaplanması için geliştirilmiştir. Daha sonra Debye tarafından dielektrik malzemeleri kalıcı dipol momentlerin hesaplanmasında uygulandı.



Şekil 2.9 Yönelim Kutuplanması. [Çavuş,2006]

Elektronik, atomik ve iyonik kutuplanmalarda yükler birbirlerinden uzaklaşırken, yönelme kutuplanmasında kalıcı dipoller, dış alan etkisiyle dönmeye zorlanırlar Şekil 2.9.

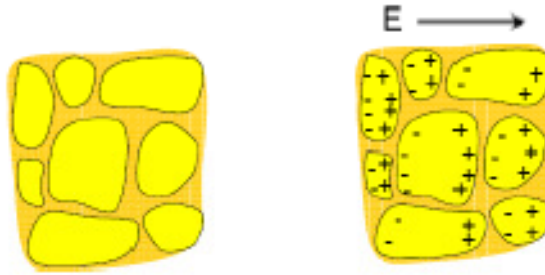
Kutuplanmanın yönlendirilmesi için gerekli zaman lokal viskozite tarafından belirlenir. Dipol durulma zamanı sıcaklık ve çevredeki kimyasallara bağlı olarak değişir. Dipol kutuplanmanın tamamen oluşması için dipol momentlerin büyüklüğüne göre $10^{-4} - 10^{-7}$ sn yeterlidir.

2.1.2.2 Ara Yüzey-Uzay Yük Kutuplanması

Polikristal malzemelerin birleşme yüzeylerinde serbest yük birikebilir. Bunun sonucunda da kristalde arayüzey kutuplanması meydana gelir. Biriken bu yükler, elektrotlardaki görüntü yükleri ile etkileşir ve diğer meydana gelen kutuplanmaları da olumlu etkiler.

Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) etkisi adı verilen ara yüzey kutuplanmasının, kristalitlerin birleşme yüzeyleriyle ilgili olduğu, yapılan pek çok çalışmada yer almaktadır. Bu yüzeyler serbest yüklerin bir kristalitten diğerine geçişini engellemektedir. Yani yapıları birbirinden izole ederler. Oluşan bu bariyerlerin sebebi yüzeyler arasındaki hava katmanından veya oksidasyondan ya da yüzey katmanının yalıtkanla kaplanmasından kaynaklanabilir. Ara yüzey kutuplanması tek kristaldeki boşluklar, safsızlıklar, çatlaklar gibi kusurlardadeşiklerin birikimi ile meydana geldiği ortaya konulmuştur [Popescu, Bunget,1984].

Elektronik, iyonik ve yönelme kutuplanmalarının ortak noktası, maddede ki bağılı yüklerinin yer deęiřtirmesi ve yönelme etkilerinin ortaya koyduęu bir kutuplanmadır. Bu tür kutuplanmalarda atom ve moleküller; uygulanan dıř alanı da içeren bir yerel alan etkisi altında kalırlar. Ara yüzey kutuplanması ise serbest yüklerin oluřturduęu bir kutuplanmadır ve materyalin hacmindeki uzay yüklerinin veya dielektrięin ara yüzeylerindeki yüzey yüklerinin birikmesine sebep olduęundan elektronik, iyonik ve yönelim kutuplanmasının aksine büyük ölçüde elektrik alanı deęiřtirir. [Tareev,1979] ,[Von Hippel,1969]. Malzemenin ara yüzeylerinde biriken bu yükler madde içindeki elektrik alanının artmasına buna baęlı olarak da malzemenin kapasitansının artmasına sebep olur. Sonuç olarak enerji depolanmasını temsil eden ϵ' nün deęerinde de artma görülür. Bu kutuplanma mekanizmasının, dıř etkiyle uyarıldıktan sonra tekrar denge konumuna gelmesi için gerekli durulma zamanına karşılık gelen frekans bölgesi düşük ve orta düzey frekanslar bölgesindedir .[Parlaktürk ,2007]

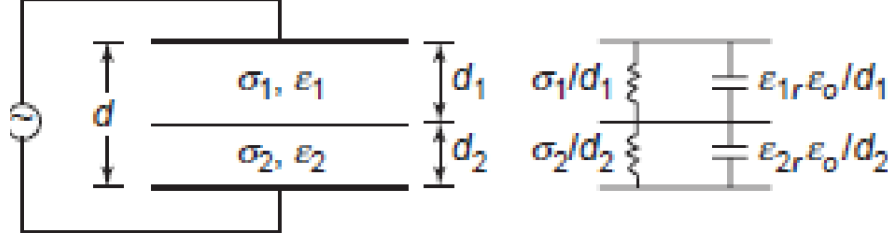


Şekil 2.10 Arayüzey –Uzay Yükü Kutuplanması [Çavuş,2006]

Bu kutuplanma genellikle amorf, polikristal katılarda veya tuzaklar bulunduran malzemeler de görülür. Kontaklardan gelebilen yük taşıyıcıları (elektronlar, delik, ya da iyonlar), ara yüzlerdeki veya madde içindeki tuzaklara takılabilir ya da kontaklardaki yüklerin hareketine veya deřarj olmasına engel olabilir. Bu durumda, uzay yüklerinin teşkil edilecekleri alan dağıtım, bozuk olacak ve dolayısıyla ortalama dielektrik geçirgenlięi etkilenecektir. Ařaęıdaki bölümlerde, hangi uzay yükü ne tür bir kutuplanmaya yol açabileceęine dair durumlar ele alınacaktır.

Şekil 2.10 da görüldüğü gibi uzay yükü, ya da arayüzey kutuplanma, pozitif ve negatif uzay yükleri malzemenin hacmi içindeki veya farklı malzemeler arasındaki ara yüzde bulunan hareketli pozitif ve negatif yüklerin uygulanan bir alan altında ayrılması meydana gelir. Bu uzay yükleri de alan dağılımını deęiřtirebilir. Birbirine

paralel farklı iki malzemenin içeren bir dielektrik bileşik örneğimiz olsun ve bu dielektrik örnekte Şekil 2.11’de gösterildiği gibi birim alana sahip iki paralel metalik plakalar arasındaki yerleştirilmiş olsun.



Şekil 2.11 Birim alana sahip iki paralel levha arasında farklı iki dielektrik malzeme [Kao,2004].

A.C. akımda devrenin direncine empedans denir. Direncin tersi iletkenlik olduğu gibi alternatif akımda ki iletkenliğe admitans denir. Yani A.C. akımda devrenin akıma gösterdiği kolaylık olarak tanımlayabiliriz. Numunelerin empedansları bir birine seridir bu durumda A.C. alan altında toplam admitans

$$Y = \frac{Y_1 Y_2}{Y_1 + Y_2} \text{ burada} \quad (2.30)$$

$$Y_1 = \frac{\sigma_1 + j\omega\epsilon_{1r}\epsilon_0}{d_1} \quad (2.31)$$

$$Y_2 = \frac{\sigma_2 + j\omega\epsilon_{2r}\epsilon_0}{d_2} \quad (2.32)$$

Burada ϵ_{1r} ve ϵ_{2r} dielektrik geçirgenlik σ_1 ve σ_2 iletkenlik ve d_1 ve d_2 birinci ve ikinci tabakanın kalınlıklarıdır. Eşitlikleri birleştirirsek

$$Y = \frac{\sigma_1 \sigma_2}{\sigma_1 d_2 + \sigma_2 d_1} \left[\frac{(1 - W^2 \tau_1 \tau_2 + W^2 \tau_1 \tau + \omega^2 \tau_2 \tau) + j(\omega \tau_1 + \omega \tau_2 + \omega^3 \tau_1 \tau_2 \tau - \omega \tau)}{1 + \omega^2 \tau^2} \right]$$

$$\tau_1 = \frac{\epsilon_{1r} \epsilon_0}{\sigma_1} \quad \tau_2 = \frac{\epsilon_{2r} \epsilon_0}{\sigma_2}$$

$$\tau = \frac{(\epsilon_{1r}d_2 + \epsilon_{2r}d_1)\epsilon_0}{\sigma_1d_2 + \sigma_2d_1} \quad \text{Y yi söyle yazabiliriz.}$$

$$Y = \frac{\sigma}{d} + \frac{j\omega\epsilon_r\epsilon_0}{d}$$

eşitlikler birleştirildiğinde toplam dielektrik geçirgenlik ve iletkenlik

$$\epsilon_r = \frac{1}{\epsilon_0} \left(\frac{\sigma_1\sigma_2d}{\sigma_1d_2 + \sigma_2d_1} \right) \frac{\tau_1 + \tau_2 + \omega^2\tau_1\tau_2\tau - \tau}{1 + \omega^2\tau^2}$$

$$\sigma = \left(\frac{\sigma_1\sigma_2d}{\sigma_1d_2 + \sigma_2d_1} \right) \frac{(1 - \omega^2\tau_1\tau_2 + \omega^2\tau_1\tau + \omega^2\tau_2\tau)}{1 + \omega^2\tau^2}$$

statik DC alan altında $\omega = 0$. Statik toplam dielektrik geçirgenlik ve iletkenlik

$$\epsilon_{rs} = \left(\frac{\sigma_1\sigma_2d}{\sigma_1d_2 + \sigma_2d_1} \right) \frac{\tau_1 + \tau_2 - \tau}{\epsilon_0}$$

$$\sigma_s = \left(\frac{\sigma_1\sigma_2d}{\sigma_1d_2 + \sigma_2d_1} \right)$$

Yüksek frekansta uzay yükü alanın yükünü izleyemez böylece uzay yükü polarizasyonu oluşmaz. ω sonsuza giderken

$$\epsilon_{r\infty} = \frac{\epsilon_{1r}\epsilon_{2r}d}{\epsilon_{1r}d_2 + \epsilon_{2r}d_1}$$

$$\sigma_{\infty} = \sigma_s \frac{\tau_1\tau_2 + \tau_1\tau + \tau_2\tau}{\tau_2}$$

Esas olarak $\epsilon_{r\infty}$ un iyonik ve atomik kutuplanmaya katkısını düşünebiliriz. Böylece toplam kutuplanma

$$P = (\epsilon_{rs} - 1) \epsilon_0 F = N \alpha F \quad (2.33)$$

Kutuplanmaya İyonik elektronik ve yönelimin katkısı

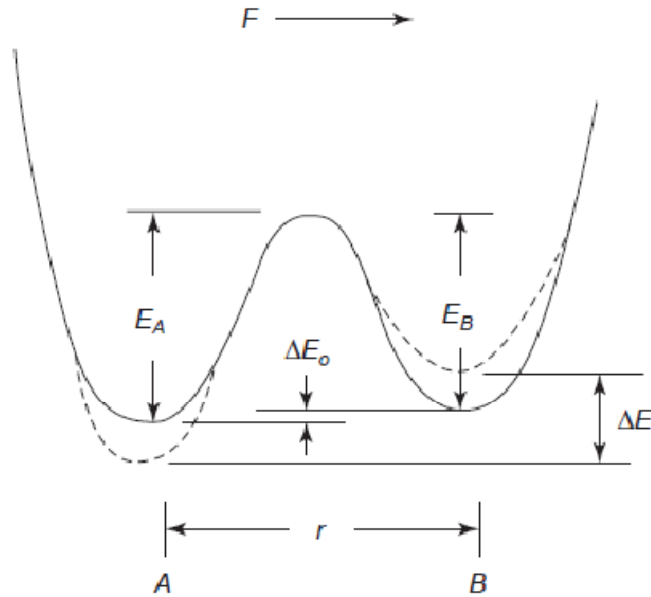
$$P = (\epsilon_{r\infty} + \epsilon_{rs} - 1) \epsilon_0 F = N (\alpha_{\infty} + \alpha_0) F \quad (2.34)$$

Sonuçta $P - P'$ uzay yükünün kutuplanmaya katkısıdır.

$$P_c = P - P' = (\epsilon_{rs} - \epsilon_{r\infty} - \epsilon_{r0}) \epsilon_0 F = N (\alpha - \alpha_{\infty} + \alpha_0) F \quad (2.35)$$

2.1.2.3 Atlama (Hopping) Kutuplanması

Bir dielektrik malzemede, yerleşmiş yükler (iyonlar ve boşluklar, ya da elektron ve delikler) bir yerden başka bir yere atlama yapabilir ve bu durumda oluşan kutuplanmaya atlama kutuplanması denir.



Şekil 2.12 Bir çift kuyu potansiyel bariyeri [Kao,2004]

Bu yükler kısa bir süre için bir yerden başka bir yere serbestçe hareket yeteneğine sahiptirler daha sonra bir tuzakta yerleşmiş bir durumda sıkışıp orada uzunca bir süre dururlar. Zaman zaman bu yükler diğer yere geçmek için potansiyel bir bariyeri bir sıçrama yaparak aşabilirler. Aslında, iyonik kristallerdeki iyonlar ya da boşlukların hareketi, camsı ve amorf yarıiletkenlerde elektronlar ya da deliklerin

hareketi, atlamalı sürecine bağlıdır. Bir parçacığın bir yerden diğer yere geçişi potansiyel bariyerin genişliğine ve yüksekliği bağlı olarak atlama ya da tünelleme olabilir. Şekil 2.12 de basit bir çift kuyu potansiyel bariyeri görülmektedir.

Termal dengede, A daki yüklü bir parçacığın (örneğin, bir negatif yüklü) parçacık yerinde bir pozitif yük bırakıp B de negatif bir yük oluşturarak bir dipol formu meydana getirir. Bunun için A dan B atlama ortalama zamanı olasılığı ve benzer şekilde, B den A yüklü parçacık için ters yönde atlama olasılığı

$$P_{0(A \rightarrow B)} = Ce^{\left(\frac{E_A}{kT}\right)} \quad (2.36)$$

$$P_{0(B \rightarrow A)} = Ce^{\left(\frac{E_A + \Delta E_0}{kT}\right)} \quad (2.37)$$

Burada C bir sabit ve E_A atlama geçişi için aktivasyon enerjisidir ve $\Delta E_0 = E_A - E_B$

Yükün B den A ya geçmesi, A dan B ye geçmesinden kolaydır. Böylece bir Elektrik alanı uygulandığında ki olasılık

$$P_{(A \rightarrow B)} = Ce^{\left(\frac{E_A + a\Delta E'}{kT}\right)} \quad (2.38)$$

$$P_{(B \rightarrow A)} = Ce^{\left(\frac{E_A - (1-a)\Delta E'}{kT}\right)} \quad (2.39)$$

Burada $\Delta E' = \Delta E - \Delta E_0$ uygulanan alan E alanının meydana getirdiği potansiyel engelin yükseklik farkıdır , $a\Delta E'$ A daki potansiyel bariyerin yüksekliğindeki artışı , $(1-a)\Delta E'$ B deki potansiyel bariyerin yüksekliğindeki azalışını göstermektedir. Açıkçası $\Delta E'$ nin değeri E ye göre \vec{r} vektörünün (A den B ye geçiş eksenini) yönüne bağlıdır. Böylece $\Delta E'$;

$$\Delta E' = \Delta E - \Delta E_0 = qEr \cos \theta$$

şeklinde yazılabilir. Burada $\theta=0$ iken \vec{r} vektörü ile E aynı yönlüdür. $\theta=90$ iken uygulanan alan orijinal potansiyel bariyeri etkilememektedir. Olasılık terimlerini

$$P_{(A \rightarrow B)} = P_{0(A \rightarrow B)} - P' \text{ ve } P_{(B \rightarrow A)} = P_{0(B \rightarrow A)} + P' \quad (2.40)$$

şeklinde yazabiliriz. Uygulanan alan A dan B ye atlama olasılığını P' kadar azaltırken B den A ya atlama olasılığını artırmaktadır. 2.36 eşitliği ile 2.37 ve 2.38 ile 2.39 eşitliğini bölersek

$$\frac{P_{0(B \rightarrow A)}}{P_{0(A \rightarrow B)}} = e^{\left(\frac{\Delta E_0}{kT}\right)}$$

$$\frac{P_{(B \rightarrow A)}}{P_{(A \rightarrow B)}} = e^{\left(\frac{\Delta E}{kT}\right)} e^{\left(\frac{\Delta E' + \Delta E_0}{kT}\right)}$$

Eğer parçacığın A ya da B de yerleşmiş olduğunu varsayarsak

$$P_{0(A \rightarrow B)} + P_{0(B \rightarrow A)} = P_{(A \rightarrow B)} + P_{(B \rightarrow A)} = 1 \text{ olur.}$$

Eşitlik (2.40) kullanarak

$$P' = P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)} \left(\frac{1 - e^{\frac{qEr \cos \theta}{kT}}}{1 - P_{0(B \rightarrow A)} \left(e^{\frac{qEr \cos \theta}{kT}} - 1 \right)} \right)$$

elde ederiz. $\frac{qEr}{kT} \ll 1$ ise P' yaklaşık olarak

$$P' \approx P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)} \left(\frac{qEr \cos \theta}{kT} \right)$$

elde edilir. Rastgele atlamalı dipol momenti

$$U_h = qr$$

Atlamalı dipol momentin yönelimsel dipol momente olay olarak benzer olduğu düşünülebilir ama doğaları bakımından farklıdır. Atlamalı dipol moment bir potansiyel kuyudan bir başka potansiyel kuyuya yüklü bir parçacığın geçişi olmasına

karşın, yönelimsel dipol moment parçacık içinde bağlı yükleri oluşturduğu kalıcı dipol moment anlamına gelir.

$$U_{hF} = U_h \langle p' \cos \theta \rangle$$

Burada p' indüklenen alanın arttırdığı atlamalı kutuplanma tarafında üretilen olasılık tır. Atlamalı dipol momentin yönü, uygulanan alanın yönünde yazılabilir.

$$\langle p' \cos \theta \rangle = \frac{\int p' \cos \theta dN}{\int dN} = \frac{\int_0^\pi \overline{P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)}} \left(\frac{qEr \cos \theta}{kT} \right) \cos \theta \frac{1}{2} N \sin \theta d\theta}{\int_0^\pi \frac{1}{2} N \sin \theta d\theta}$$

$$= \overline{P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)}} \left(\frac{qrE}{3kT} \right)$$

$$\langle U_{hF} \rangle = \frac{q^2 r^2 E}{3kT} \overline{P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)}}$$

Böylece atlamalı kutuplanma

$$\alpha_h = \frac{q^2 r^2}{3kT} \overline{P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)}} \quad (2.41)$$

Burada $\overline{P_{0(A \rightarrow B)} P_{0(B \rightarrow A)}}$ bu iki olasılığın ürettiği ortalamasıdır. Çünkü E_A ve E_B yerden yere değişir.

2.1.2.4 Kendiliğinden kutuplanma

Her türlü madde içerisindeki atomlar veya moleküllerde her zaman elektronik kutuplaşma mevcuttur; iyonik polarizasyon bir veya daha fazla atomun değerlik elektronlarını diğerleri ile paylaşımı nedeniyle sadece iki veya daha fazla farklı türde

atomdan oluşan maddelerde bulunur. Hem elektronik hem de iyonik kutuplaşmalar da elektrik alanları tarafından oluşturulan dipol momentler indüklenmiş dipol momentler olarak sınıflandırılır. Kısacası, hem elektronik hem de iyonik kutuplaşmalar değerlik elektron bulutlarının deformasyonu ile kendi özgün termal denge durumundan yeni bir denge durumuna kaymalarıyla meydana gelmektedir.

Bu tür kutuplaşma sıcaklığa sadece biraz bağlıdır çünkü bu olaylar molekül içi olaylardır. Ancak, yönelimsel kutuplanma, negatif (özellikle elektronlar) ve pozitif yükleri (özellikle çekirdek) ağırlık merkezi çakışmayan ve böylece asimetrik bir yapıya sahip moleküllerden oluşan maddelerde bir dış alan olmasa bile kalıcı dipol momentle sahip olurlar. Bu kalıcı dipol momentleri yönleri madde içinde rastgele dağılımlıdır. Bir dış elektrik alanı bu rastgele kalıcı dipol momentlerin yönlerini elektrik alan doğrultusunda yönelmeye zorlar ve bunun sonucunda da yönelimsel kutuplanma meydana gelir. Dış alan kaldırıldığında ısısal titreşimlerden dolayı önceden elektrik alan doğrultusuna olan kalıcı dipoller yine tekrara rastgele yönelerek toplam net polarizasyon sıfır olur. Bu sıcaklık arttıkça kutuplanmanın azalmasının nedenidir.

Ancak, kendiliğinden kutuplanma denilen başka türlü kutuplanma da vardır. Mıknatıslanmaya analogi yapılarak, elektriksel kutuplanma iki ana kutuplanma grubuna ayrılabilir:

Kendiliğinden kutuplanma kristal yapında elektriksel düzen sergileyen malzemelerde gerçekleşir. Bu kendiliğinden kutuplanma sadece simetrik yapısı olmayan tek kristal veya polikristal malzeme de meydana gelir. Çünkü sadece simetrik olmayan yapı, yani pozitif ve negatif yük merkezleri çakışık olmayan yapılar bu malzemelerde mevcuttur. Ferroelektrik malzemelerde elektriksel kutuplanma bir dış elektrik alan yardımı olmadan kritik bir sıcaklıkta, bir faz geçişi nedeniyle kendiliğinden meydana gelir. Bu kritik sıcaklığa Curie sıcaklığı (T_c) denir. T_c sıcaklığının altında, kristal genellikle apolar bir yapıdan polar bir yapıya geçerek bir faz geçişine uğrar. $BaTiO_3$ ferroelektrik kristali bu duruma uygun tipik örnektir.

Bir kristal eksenini boyunca dipol moment noktalarının birleşmesi ile yavaş yavaş bir bölge oluşturacak ve giderek sistemin serbest enerjisi artacaktır. Bu süreç

sürekli devam edemez; bölge belli bir büyüklüğe ulaştığında büyüme durur ve sistemin serbest enerjisini azaltmak için dipol moment noktaları, ters yönde başka bir bölge oluşturulacaktır. Tek kristal veya polikristallerde moment noktaları çeşitli yönlerde olan pek çok bölge vardır.

Ancak tüm bölgelerin dipol momentlerinin vektörel toplamı sıfır olur. Her bölge bölgesi büyük bir dipol olarak kabul edilebilir. Dış elektrik alanı altında, bu rastgele düzenlenmiş bölgelerin yönleri toplamda bir kendiliğinden kutuplanmayla sonuçlanacak şekilde alanın yönünde yönelme eğilimindedirler. Elektrik alan kaldırılrsa bile bu kendiliğinden kutuplanma madde içinde kalmaya devam eder. Bu kutuplanma alanı ferromanyetik malzemelerdekine benzer bir histerezis loop oluşturur.

2.1.3 Dielektriklerin Sınıflandırılması

Dielektrik malzemeler nonferroelektrik (normal dielektrik veya paraelektrik) ve ferroelektrik malzemeler olarak iki ana kategoriye ayrılır olabilir.

2.1.3.1 Nonferroelektrik Maddeler

Bu kategorideki malzemelerinde, elektrik kutuplanma dış elektrik alanları tarafından uyarılır. Elektrik kutuplanma mekanizmalarına dayanarak; apolar, polar ve dipolar malzemeler olarak üç sınıfa ayırabiliriz.

2.1.3.1.1 Apolar Maddeler

Bu sınıftaki maddelerde elektrik alan sadece elektron bulutlarının (özellikle değerlik elektron bulutları) elastik küçük kaymalarına neden olabilir. Bu nedenle apolar maddelerde yalnızca elektronik kutuplaşma vardır. Genellikle elementel malzeme olarak adlandırılan silikon (Si) elmas (C) gibi tek bir tür atomdan oluşan malzemelerdir. Bu malzemelerde kayda değer bir biçimde görünür bölgeden morötesi bölgeye kadar rezonans frekansı ω_0 da soğrulma gerçekleşir. Rezonans frekansı daha düşük frekanslarda için, dielektrik geçirgenlik frekanstan bağımsız ve

statik dielektrik geçirgenliğe eşit olmalıdır. Maxwell bağıntısına göre, bu tür malzemelerin kırılma indisi

$$n = (\epsilon_{rs})^{\frac{1}{2}}$$

olarak ifade edilebilir ve toplam kutuplanabilirlik

$\alpha = \alpha_e$ şeklindedir.

2.1.3.1.2 Polar Maddeler

Bu sınıftaki maddelerde elektrik alan elektron bulutlarının (özellikle değerlik elektron bulutları) elastik küçük kaymalarına neden olabildiği gibi iyonlarında elastik küçük kaymalarına neden olabilir. Bu nedenle bu tür malzemelerin hem elektronik hem de iyonik kutuplaşma vardır. Bu malzemeler birden fazla farklı atom içeren ve kalıcı dipol momentleri olmayan moleküllerden oluşabilirler. Bu durumda gözlemlenen soğurma iki rezonans frekanslarında oluşur: biri optik frekans bölgesi (elektronik polarizasyon karşılık gelen) ve diğeri düşük rezonans frekans bölgesi (kızıl ötesi iyonik polarizasyon karşılık gelmektedir). Toplam kutuplanabilirlik

$\alpha = \alpha_e + \alpha_i$ şeklindedir.

2.1.3.1.3 Dipolar Maddeler

Bu sınıftaki maddelerde elektronik, iyonik ve dipol olmak üzere üç temel polarizasyon türü de vardır. Böylece toplam kutuplanabilirlik

$$\alpha = \alpha_e + \alpha_i + \alpha_o$$

şeklindedir. Bu sınıfa ait maddeler kalıcı dipol momentli olan maddelerdir. Uygulanan bir elektrik alan kalıcı dipollerin yönelimine neden olarak yönelimsel kutuplanma meydana getirecektir. Ancak, katı halde, kritik bir sıcaklık vardır bu

sıcaklığın altında bütün dipoller donmuş ve yönelimsel kutuplanmaya katkıda bulunma yeteneğini yitirmiştir. Ama pek çok maddede, dipoller malzemenin erime noktasının altında donmuş halde bulunmaktadır.

Dielektrik malzemelerin genel olarak, tek kristalleri olmadığı onların ya amorf veya polikristal yapıda olduğu ve çok miktarda çeşitli tuzaklar içerdiği unutulmamalıdır. Dahası, iletken olmayan değil, her zaman yük taşıyıcılar olan (elektronlar, delik, ya da her ikisi) malzemelerdir. Bu nedenle, bu durumda, toplam kutuplanma uzay yükü kutuplanması içermelidir

$$\alpha = \alpha_e + \alpha_i + \alpha_o + \alpha_d$$

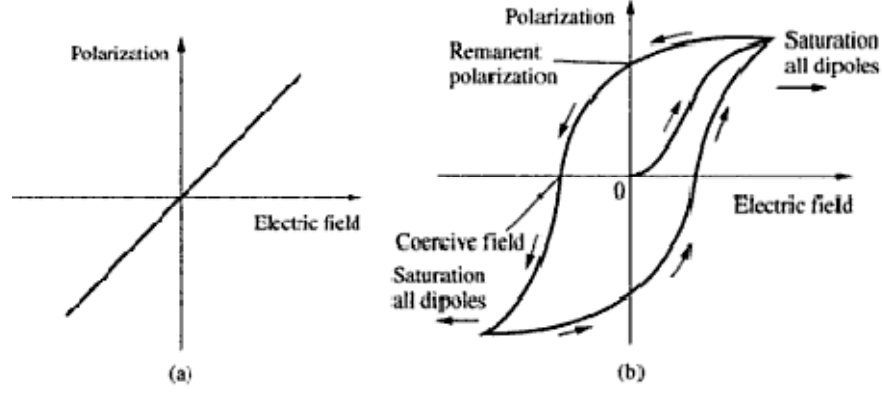
Burada α_d uzay yükü kutuplanabilirliği ve $\alpha_h + \alpha_c$ içerir.

2.1.3.2 Ferroelektrik Maddeler

Bir ferroelektrik malzeme normalde tek kristal veya polikristal yapıdadır ve belli bir sıcaklık aralığında kaybolan bir kendiliğinden kutuplanmaya sahiptir. Curie sıcaklığı olarak adlandırılan kritik bir sıcaklıkta düzenli fazdan düzensiz faz geçiş görülür. Bu sıcaklıkta, dielektrik geçirgenlik düzensiz fazdan 3-4 kat daha fazla bir değere ulaşabilir.

Düzenli düzensiz faz geçişi esnasında atomların yerlerinde merkezi olmayan kaymalar olur böylece kristaller ferroelektrik duruma geçerler. Bu faz geçiş sadece mekanik zorlanma sebebiyle hacmi ve şekli değişimi değil, aynı zamanda optik kırılma indisinin de değişme eğiliminde olduğu anlamına gelir. Böylece, ferroelektrik malzemeler sadece ferroelektrik olayları sergileyen değil, pyroelektrik, piezoelektrik ve birçok elektro-optik etkiler gibi teknolojik uygulamalar için kullanılacak malzemeler olduğu görülür. Genel olarak, ferroelektrik malzemelerde kendiliğinden kutuplanmanın haricinde ayrıca elektriksel nedenlerden dolayı meydana gelen kutuplanmalar vardır, ama bu kendiliğinden kutuplanma ile karşılaştırıldığında yok

denecek kadar küçüktür. Ferroelektrik olayları ile ilgili olaylarda pratik olarak, elektriksel olarak uyarılmış kutuplaşma göz ardı edilebilir. [Kao,2004]



Şekil 2.13 Dielektrik Polarizasyon özellikleri. Ferroelektrik malzemeler için Polarizasyonun tipik doğrusal ve histeresiz döngüsü.

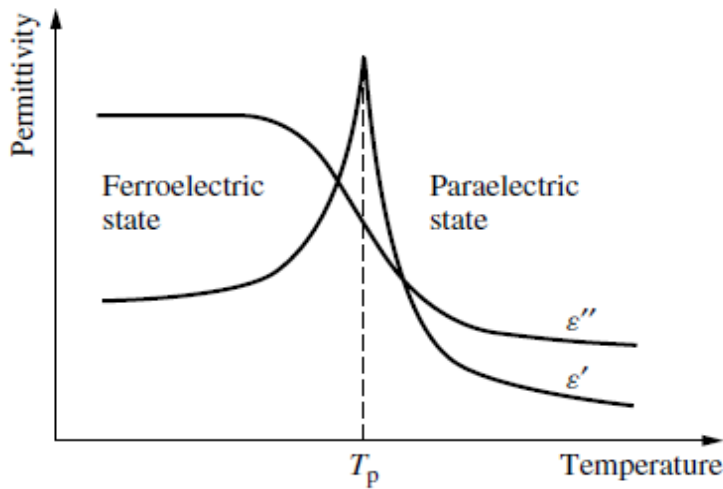
Dielektrik malzemelerin çoğu paraelektriktir. Şekil 2.13a da görüldüğü gibi, bir paraelektrik malzeme kutuplaşma doğrusaldır. Ayrıca dış elektrik alan kaldırıldığında paraelektrik malzeme iyonları orijinal pozisyonlarına geri döner böylece paraelektrik malzemelerdeki iyonik yer değişimleri geçicidir. Ferroelektrik malzemeler piezoelektriklerin alt grubu olan pyroelektriklerin bir alt grubudur. Ferroelektrik malzemelerin elektrik alanına karşı kutuplanma yanıtı doğrusal değildir. Şekil 2.13b 'de görüldüğü gibi, ferroelektrik malzemeler uygulanan alana karşı kutuplanması bir histeresiz şeklindedir. Histeresiz döngü malzemede kalıcı elektrik dipollerin varlığından kaynaklanır.

Dış elektrik alan ilk anda 0 noktasından yükseldiğinde, kutuplanma dipollerin elektrik alan yönünde dizilmesinden daha hızla artar. Alan yeterince güçlü olduğunda, tüm dipoller alan ile aynı yönde konumlanırlar, bu nedenle doyuma ulaşır. Uygulanan elektrik alan doyma noktasından azalır, kutuplanma da azalır. Ancak, dış elektrik alan sıfıra ulaştığında, kutuplanma sıfıra ulaşmıyor. Sıfır alan altında ki bu kutuplanmaya kalıcı kutuplaşma denir. Elektrik alanın şiddeti ters yönde artmaya başladığında, kutuplanma azalmaya başlar. Ters alan belirli bir değere ulaştığında, zorlayıcı alan denilen alanın etkisiyle kutuplanma sıfır olur. Bu ters yöndeki alan daha da artarak, ters doyma noktasına ulaşılabilir. Alan doyma noktasına geldiğinde, olay

ters yönde kendisini tekrar eder. Bir ferroelektrik malzeme için Curie sıcaklığı denilen belirli ve özel bir sıcaklık değeri vardır. Ferroelektrik olma durumu sadece Curie sıcaklığından düşük sıcaklıklarda mümkündür. Curie sıcaklığından daha yüksek sıcaklıklarda, ferroelektrik malzeme ferroelektrik durumdan paraelektrik duruma geçer.

Ferroelektrik malzemelerdeki Curie sıcaklığı bilimsel olarak çok ilginçtir. Şekil 2.15 görüldüğü gibi ferroelektrik malzemenin Curie sıcaklığı yakınında dielektrik geçirgenlik keskin bir şekilde artıyor. Curie noktasından hemen sonra bir yüksek değer yine nispeten keskin bir düşüş gözleniyor. [Chen et al,2004]

Ferroelektrik malzemelerin elektriksel özellikleri sıcaklık ve elektrik alana bağlı olarak değişmektedir. Bu malzemeler genellikle yüksek dielektrik geçirgenliğe sahiptir. Bir elektrik alan uygulandığında, merkezindeki atomun elektrik alanının değişimini takip eden anlık bir kutuplanma gösterirler.



Şekil 2.14 Bir ferroelektrik malzemenin sıcaklık bağımlılığı [Chen et al,2004]

Uzun yıllardır ferroelektrik malzemeler çeşitli cihazlarda kullanılmaktadır. Bu durumla ilgili son birkaç yılda yeni bazı gelişmeler sağlanmış ve ferroelektrik malzemelerin rastgele erişimli hafızalarında (RAM) kullanılmaları ve buna benzer birçok cihazda yerini alması beklenmektedir. Bunun yanında, ferroelektrik malzemeler yüksek dielektrik geçirgenliğinden dolayı elektronik endüstrisi için küçük boyutlu yüksek kapasiteli kapasitör üretiminde kullanılabilir. Dahası

ferroelektrik malzemeler, çalışma frekansları Si tabanlı cihazlarından daha yüksek bir aralıkta olan, ayarlanabilir mikrodalga cihazlarının geliştirilmesinde rol oynayarak mikrodalga alanındaki uygulamalarla uydular, yeryüzünde iletişim ve bunun gibi alanlarda kullanılabilir.

Ferroelektrik ince filmler kullanılarak elektriksel olarak ayarlanabilir mikrodalga tümleşik devreleri geliştirilebilir. Bu yüzden ferroelektrik ince filmlerin dielektrik geçirgenliği ve ayarlanabilirliğinin karakterize edilmesi çok önemlidir. Ferroelektrik malzemelerin karakterizasyonunda kompozit, polikristal seramik, tek kristal tozu ve ince film halinde olmasına göre, farklı yöntemler uygulanmalıdır. Genellikle kompozitler, seramikler ve ferroelektrik kristal tozunun dielektrik özellikleri karakterize edilirken nonrezonant ve rezonant gibi metotlar kullanılır. Çoğunlukla bu tip malzemelerin dielektrik durulma zamanları ile ilgilenilir ve ferroelektrik ince filmler genellikle devre metotları kullanılarak karakterize edilir ve hemen hemen tüm dielektrik özelliğinin belirlenmesi istenir. [Parlaktürk,2007] ,[Chen,2004]

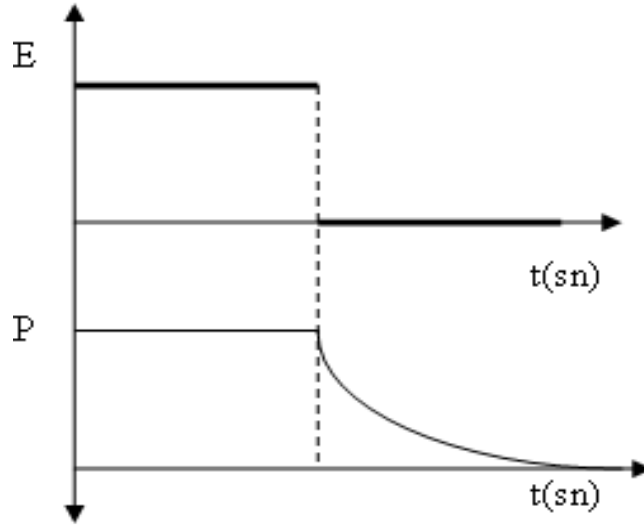
2.1.4 Dielektrik Durulma (Relaksasyon)

Durulma zamanının (τ) belirlenmesi ile

- Kutuplanma türünün belirlenmesi
 - Elektriksel mekanizmanın belirlenmesi
 - Elektriksel özelliklerin öğrenilmesi
- mümkün olmaktadır.

Kutuplanmanın yönelmesi ve durulma zamanı, moleküllerin içyapılarına, dielektriklerin moleküllerinin yapısına veya moleküler düzenle ilişkilidir. Durulma zamanı dielektrikte bulunan moleküllerin hareketinin ölçüsüdür. Durulma zamanı, elektrik alanın bir periyot içinde değişim yapması sonucunda, o periyot içinde dipolün yönelme yapması için geçen süre olarak da tanımlanabilir. Durulma zamanına karşılık gelen frekans, malzemenin rezonans frekansına karşılık gelir. Elektrik alanın frekansı, Durulma frekansından küçük olduğu zaman kutuplanma kolaylıkla oluşur ve elektrik alanı izler. Bu durumda dielektrik kayıplar, ihmal

edilecek kadar azdır. Frekans artarak Durulma bölgesine ulaşınca, kutuplanma alana uymakta zorlanır ve faz farkı artar. Bu durumda kayıplarda maksimum olur. Frekans artmaya devam ederse, kutuplanma oluşmaz ve dielektrik geçirgenlik hızla azalır. Kutuplanma oluşmadığı anda ise, dielektrik kayıp olmayacaktır.



Şekil 2.15 Elektrik alan değişiminin kutuplanmaya etkisi

Bir dielektriğe bir elektrik alan uygulayıp sonra onu kaldırdığımızda kutuplanmanın azalması dielektriğin geçmişinden bağımsızdır, sadece kutuplanmanın yönünün ve büyüklüğünün anlık değişimine bağlıdır ve onunla orantılıdır. Kutuplanmanın bir süre daha devam etmesi eylemsizliğin, zamanla azalması da madde içindeki etkileşmelerin bir sonucudur. Her etkileşimden sonraki kutuplanma “P” etkileşimden önceki “P₀” ile orantılı olacaktır. Bu durumda kutuplanmadaki değişim;

$$P - P_0 = \Delta P = -aP\Delta t$$

yazabiliriz. Buradaki eksi işareti sürekli bir azalmadan gelmektedir.

$$\frac{\Delta P}{P} = -a\Delta t$$

limit durumunda

$$\frac{dP}{P} = -a dt$$

yazabiliriz. Her iki tarafın integralini alırsak

$$\ln(P) = -at + c$$

ve başlangıç anı için $t=0$ da $P=P(0)$ alırsak

$$c = \ln(P(0))$$

$$\ln P - \ln P(0) = -at$$

$$\ln \frac{P}{P(0)} = -at$$

$$P = -aP(0)e^{-at}$$

Burada e nin üssünün birimsiz olması için a nın $1/\text{sn}$ biriminde olması gerekmektedir. Böylece $a=1/\tau$ alabiliriz. **τ ya durulma zamanı (relaxation time)** denir. Böylece eşitliğin çözümü

$$P(t) = -\frac{1}{\tau} P(0) e^{-t/\tau} \quad (2.42)$$

şeklinde olur. Burada görüldüğü gibi kutuplanma hem durulma zamanına üstel olarak bağlıdır hem de durulma zamanıyla ters orantılıdır. Bu durumun yansımaları deneysel bölümdeki grafiklerin farklı biçimde kurulmalarına yansımaktadır.

2.1.5 Durulma Zamanının Dağılım Fonksiyonları

Debye (Debye, 1929) sıklıkla tek bir gevşeme zamanı olan bir sistemde sistemin elektrik alana yanıtının dielektrik dağılımını tanımlamak için kullanılmıştır.

Ancak Debye davranışından sapan pek çok malzeme için bir durulma zamanı dağılımını varlığı düşündürmektedir. Debye olmayan davranış gösteren örnekler ile Saint-Amant ve Strangway (1970), Alvarez (1973), Olhoeft (1974 ve), Pelton (1978), Knight (1983) ve Lockner ve (1985) Byerlee çalışma yaptılar. Debye davranışından gözlenen sapma Debye eşitliğinde, Cole-Cole ifadesinde ve ilgili Cole-Cole eşdeğer devresinde (Cole ve Cole, 1941) modifikasyonuna yol açmıştır (Cole ve Cole 1941). Cole-Cole devresinin önemli özelliği durulma zamanı dağılımına sabit fazlı bir devre eklenmesidir. Kuru-vakumlu ay toprağı örnekleri ile yapılan çalışmalarda Cole-Cole ifadesi ile uyumlu faydalı veriler bulundu (Olhoeft, 1974) ve Cole ve Cole (1941), içinde sabit faz elemanına benzer bir terim içeren Z^* ifadesi için kaya minerallerinin empedanslarını modellemede kullanılmıştır (Pelton, 1978 Madden ve Cantwell, 1967).

Cole-Cole ifadesine ek olarak Debye olmayan sistemleri açıklayabilmek için yaygın olarak kullanılan 3 ampirik dağılım ifadesi daha vardır: **Cole-Davidson** ifadesi (Davidson ve Cole 1951), daha sonra Cole-Cole ifadesi ve **Cole-Davidson** ifadesi birleştirildi (Davidson ve Cole 1951) ve Williams Watt'in ifadesi (Williams ve Watt ,1970). Bu ampirik ilişkilerin hepsinin ilginç bir ortak özelliği, ϵ' ve ϵ'' her ikisinin de frekansa üstel bir kanunla bağımlılık göstermesidir. Jonscher (1975) ϵ' ve ϵ'' 'ın üstel kanununu evrensel dielektrik yanıt olarak ilan etti.

Dielektrik spektroskopide durulma zamanlarını belirlemek için farklı durumlar açıklamak için farklı dağılım fonksiyonları tanımlanmış. Bunlardan en bilinenleri şöyle sıralanabilir.

- **Debye** dağılımı
- **Cole-Cole** dağılımı.
- **Cole-Davidson** dağılımı.
- **Havriliak-Negami** dağılımı
- **Fuoss-Kirkwood** dağılımı

2.1.5.1 Tek Durulma Zamanı Olan Sistemlerde Kutuplanma

Madde içinde makroskopik Maxwell eşitlikleri geçerlidir. Buna göre

$$D(r) = E(r) + \frac{P(r)}{\epsilon_0} \text{ ve ayrıca}$$

$$D(r) = \epsilon E(r)$$

$$\epsilon = \frac{D(r)}{E(r)} = \frac{E(r) + \frac{P(r)}{\epsilon_0}}{E}$$

$$\epsilon = 1 + \frac{P(r)}{\epsilon_0 E(r)}$$

$$P = (\epsilon - 1) \epsilon_0 E \quad (2.43)$$

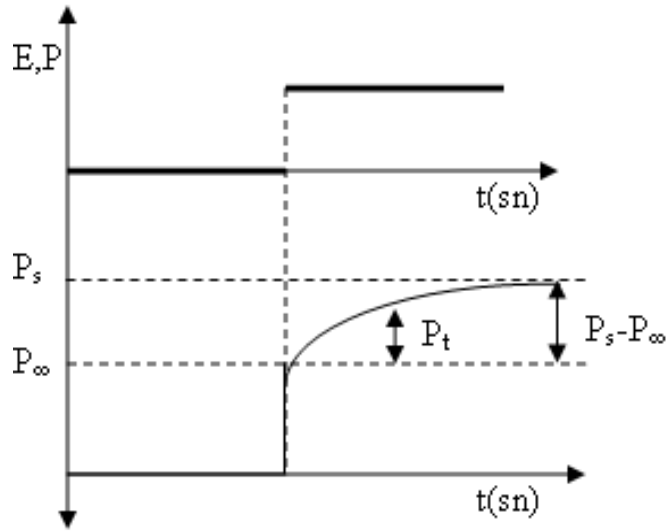
yazılabilir.

Bir dielektriğe sabit bir alan uygulandığında oluşan kutuplanma P cevaplanma süresine göre iki kısma ayrılabilir.

1- Elektronların çekirdeğe nazaran anında yer değişmesinden dolayı oluşan kutuplanma P_∞ dielektrik geçirgenliğine de yüksek frekans dielektrik geçirgenliği ϵ_∞ olarak tanımlanır.

$$P_\infty = (\epsilon_\infty - 1) \epsilon_0 E \quad (2.44)$$

Buradaki cevaplama süresi yaklaşık 10^{-16} sn civarındadır. Bu da elektromanyetik spektrumun UV bölgesine tekabül etmektedir. İyonik salınımlar ise elektromanyetik spektrumunun IR bölgesine denk gelmektedir (Şekil 2.16).



Şekil 2.16 Elektrik alan değişiminin kutuplanmaya etkisi

2- Dipollerin elektrik alanla aynı yöne yönelmesinden dolayı kutuplanma zamana bağlıdır ($P_t = P_t(t)$). Eğer alan sonsuza kadar sabit kalsa oluşan kutuplanma, statik dielektrik geçirgenliği ile ϵ_s

$$P_s = (\epsilon_s - 1)\epsilon_0 E \text{ şeklinde ifade edilir.} \quad (2.45)$$

$$P_s = P_\infty + P_t(t = \infty) \text{ [Barsoukov,2005]} \quad (2.46)$$

Eğer zaman yeterince uzun olursa P_t nin değeri $P_s - P_\infty$ eşit olacaktır.

$$\Delta P_t = K \{(P_s - P_\infty) - P_t\} \Delta t$$

olacaktır. Bunu diferansiyel olarak alırsak

$$\frac{dP_t}{\{(P_s - P_\infty) - P_t\}} = K dt$$

ve her iki tarafın integralini alırsak

$$\ln \{(P_s - P_\infty) - P_t\} = Kt + C$$

$t=0$ da $P_t=0$ olduğundan $C = \ln \{(P_s - P_\infty)\}$ olur

$$\ln \frac{\{(P_s - P_\infty) - P_t\}}{P_s - P_\infty} = Kt$$

$$(P_s - P_\infty) - P_t = (P_s - P_\infty) e^{Kt}$$

$$P_t = (P_s - P_\infty)(1 - e^{-Kt})$$

Burada e nin üssünün birimsiz olması için K 1/sn biriminde olmalıdır böylece $K=1/\tau$ alabiliriz. Buradaki τ ya **durulma zamanı (relaxation time)** denir.

$$P_t = (P_s - P_\infty)(1 - e^{-t/\tau})$$

$$P_t = ((\epsilon_s - 1)\epsilon_0 E - (\epsilon_\infty - 1)\epsilon_0 E)(1 - e^{-t/\tau})$$

$$P_t = (\epsilon_s - \epsilon_\infty)(1 - e^{-t/\tau})\epsilon_0 E$$

Uyguladığımız elektrik alan AC bir elektrik alan olduğunda($E = E_0 e^{i\omega t}$)
diferansiyel eşitlik

$$\frac{dP_t}{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\epsilon_0 E_0 e^{i\omega t} - P_t} = K dt$$

ve her iki tarafın integralini alırsak eşitliğin çözümü

$$P_t = K e^{-t/\tau} + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)}{1 + i\omega\tau} \epsilon_0 E_0 e^{i\omega t}$$

şeklinde olur.

Burada K integral sabitidir (AC elektrik alan çözümü için t=0 da $P_t=0$ şartından bahsedemeyiz) $e^{-t/\tau}$ terimi sıfır olur. $t \gg \tau$ için toplam kutuplanma

$$P = P_\infty + P_t$$

olacağından ve

$$P_\infty = (\epsilon_\infty - 1)\epsilon_0 E_0 e^{i\omega t}, \quad P = (\epsilon - 1)\epsilon_0 E_0 e^{i\omega t} \text{ için}$$

$$P = \left((\epsilon_\infty - 1) + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)}{1 + i\omega\tau} \right) \epsilon_0 E_0 e^{i\omega t} = (\epsilon - 1)\epsilon_0 E_0 e^{i\omega t} \quad (2.47)$$

yazabiliriz. Bu durumda

$$\epsilon^* = \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)}{1 + i\omega\tau} \quad (2.48)$$

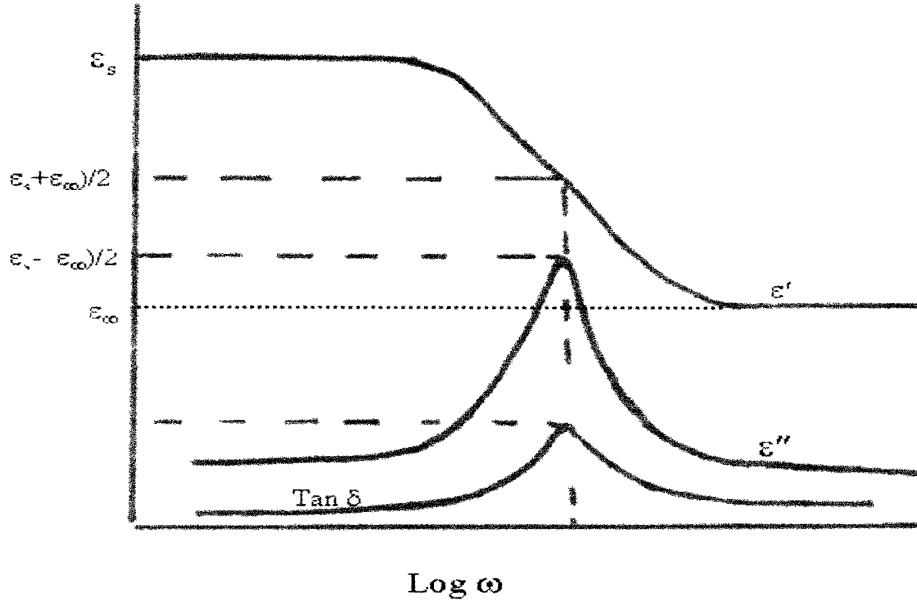
Bu ifadeyi paydasını reel yapmak için $1 - i\omega\tau$ ile çarpıp reel ve imajiner kısımlarını ayırırsak

$$\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' \quad (2.49)$$

$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.50)$$

$$\epsilon''(\omega) = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.51)$$

Polar bir dielektriğin dielektrik geçirgenliğinin sanal ve reel kısmının frekansa bağımlılığını elde ederiz. Bu bağıntılar Debye formülleri olarak adlandırılır. Şekil 2.17 de tek durulma zamanına sahip bir sitemin (Debye) dielektrik geçirgenliğinin sanal ve reel kısmının frekansla davranışı görülmektedir. [Raju,2003]



Şekil 2.17 Polar bir dielektriğin dielektrik geçirgenliği [Raju,2003]

2.1.6 Debye Denklemi

Eğer bir sistemde tek bir durulma zamanı var ise yukarıdan da anlaşılacağı gibi bu sistem Debye formülüne uyacaktır. Debye dağılımının dielektriksel ifadesini, reel ve imajiner kısımlarını yukarıda elde etmiştik.

Bu formüller genellikle Debye formülü diye adlandırılıyor. Olaya da Debye durulması denir. Debye formülünü biraz irdelersek şu özel noktalardan bahsedebiliriz.

1. $\omega\tau$ nun küçük değerleri için, reel kısım $\epsilon' \approx \epsilon_s$ olur. Çünkü 2.49 daki eşitlikte kare terimleri çok küçük olup 1 in yanında ihmal edilecekleridir. Aynı sebepten dolayı ϵ'' da küçülür ve hatta $\omega\tau = 0$ (DC durumda) da $\epsilon'' = 0$ olacaktır.

2. $\omega\tau$ nun büyük değerleri için, reel kısım $\epsilon' \approx \epsilon_\infty$ ve ϵ'' küçük olur.

3. $\omega\tau$ nun özel bir değer için ϵ'' maksimum olur. ϵ'' maksimum değerinde

$$\frac{\partial \varepsilon''(\omega)}{\partial(\omega\tau)} = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega^2 \tau^2 - 1}{1 + \omega^2 \tau^2} = 0 \text{ Sonuçta } \omega\tau = 1$$

$\omega\tau = 1$ için ε' ve ε''

$$\varepsilon' = \frac{\varepsilon_s + \varepsilon_\infty}{2}$$

$$\varepsilon''_{\max} = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2} \text{ (Şekil 2.18) [Raju,2003]}$$

Şimdi durulma zamanını bulmak ve farklı bir formalizmi ortaya koymak için 2.50 deki denklemde ω yı 2.51 de yerleştirirsek

$$\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

$$1 + \omega^2 \tau^2 = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}$$

$$\omega^2 \tau^2 = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty} - 1$$

$$\omega^2 \tau^2 = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty - \varepsilon'(\omega) + \varepsilon_\infty}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}$$

$$\omega\tau = \sqrt{\frac{\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}}$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

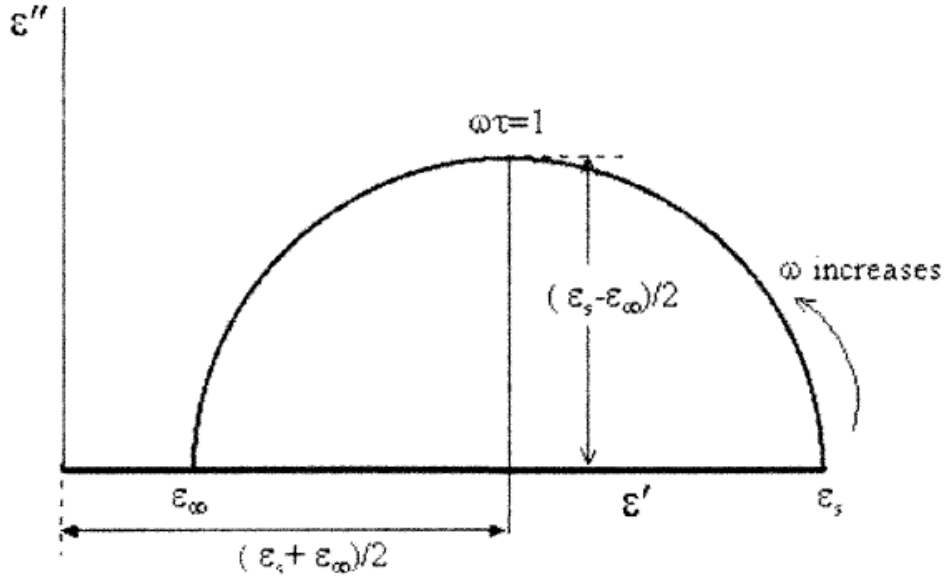
$$\varepsilon''(\omega) = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \sqrt{\frac{\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}}}{\frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}}$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty) \sqrt{\frac{\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega)}{\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty}}$$

$$\varepsilon''(\omega)^2 = (\varepsilon'(\omega) - \varepsilon_\infty)(\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega))$$

$$\varepsilon''(\omega)^2 = \varepsilon'(\omega)\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega)^2 - \varepsilon_\infty\varepsilon_s + \varepsilon'(\omega)\varepsilon_\infty$$

$$\begin{aligned}
\varepsilon''(\omega)^2 &= -\left(\varepsilon'(\omega)^2 - \varepsilon'(\omega)\varepsilon_s - \varepsilon'(\omega)\varepsilon_\infty\right) - \varepsilon_\infty\varepsilon_s \\
\varepsilon''(\omega)^2 &= -\left(\varepsilon'(\omega)^2 - (\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)\varepsilon'(\omega)\right) - \varepsilon_\infty\varepsilon_s \\
\varepsilon''(\omega)^2 &= -\left(\varepsilon'(\omega)^2 - (\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)\varepsilon'(\omega) + \left(\frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2\right) - \varepsilon_\infty\varepsilon_s + \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)^2}{4} \\
\varepsilon''(\omega)^2 &= -\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 - \varepsilon_\infty\varepsilon_s + \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)^2}{4} \\
\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 &= -\varepsilon_\infty\varepsilon_s + \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)^2}{4} \\
\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 &= \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)^2 - 4\varepsilon_\infty\varepsilon_s}{4} \\
\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 &= \frac{\varepsilon_s^2 + \varepsilon_\infty^2 + 2\varepsilon_s\varepsilon_\infty - 4\varepsilon_\infty\varepsilon_s}{4} \\
\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 &= \frac{\varepsilon_s^2 + \varepsilon_\infty^2 - 2\varepsilon_s\varepsilon_\infty}{4} \\
\left(\varepsilon'(\omega) - \frac{(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty)}{2}\right)^2 + \varepsilon''(\omega)^2 &= \left(\frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2}\right)^2 \tag{2.52}
\end{aligned}$$



Şekil 2.18 Tek durulma zamanlı sistemlerin Cole-Cole diyagramı [Raju,2003]

Bilindiği üzere çember denklemi $(X - X_0)^2 + (Y - Y_0)^2 = r^2$ şeklindedir ve elde ettiğimiz eşitliğe bu forma uymaktadır. Bu forma uygun olarak çizilen grafik metoduna Cole-Cole veya argand diyagramı denilmektedir.

Tek durulma zamanı içeren bir dielektrik için çizilen Cole-Cole grafiği tam bir yarım dairedir ve argand diyagramı üzerinde şekildeki gibi gösterilebilir. Tek bir durulma frekansına sahip bir malzemede Debye ilişkisini gösteren Cole-Cole grafiğinin merkezi, yatay $\epsilon'' = 0$ eksenini üzerinde olmaktadır ve $\omega\tau = 1$ de maksimumu olan yarım-daire meydana gelir. Ayrıca oluşan yarım dairenin merkezi $\epsilon' = \frac{\epsilon_s + \epsilon_\infty}{2}$ de ve yarıçapı $\epsilon' = \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{2}$ dir. Ayrıca yarım daire ϵ' eksenini ϵ_∞ ve ϵ_s de kesmektedir. Bu çizimin dezavantajı çizimde ω 'nın görülemeyişidir. Çoklu durulma zamanına sahip bir malzemede Cole-Cole grafiği merkezi $\epsilon'' = 0$ ekseninin altında kalan bir yarım daire (simetrik dağılım) veya bir yay oluşur. [HP,1992],[Ruffet et al., 1991],[Keleş ,2006]

Bu diyagramı kurmak durulma zamanını bulmanın en iyi yöntemlerinden ve en çok başvurulan yöntemlerden biridir. Bu diyagram yardımı ile durulma sürecinde tek tip bir relaksatör mü var yoksa daha mı fazla olduğu diyagramın yarım bir çembere oturup oturmamasından anlaşılabilir. Bu diyagramda eğrinin tepe noktasına denk gelen frekans fitting programları yardımıyla bulunur $\tau = \frac{1}{\omega}$ ifadesinden yararlanılarak durulma zamanı elde edilir. Bu diyagramlar kurulurken dikkat edilmesi gereken önemli bir nokta iki ekseninde eşit ölçekli skalada olmasıdır. Aksi halde görüntü olarak düzgün bir yarım çember gözleyemeyiz.

2.1.7 Dielektrik Spektroskopide Kullanılan Formalizmler

Dielektrik spektroskopi ölçümlerinde temel olarak ölçülen iki parametre vardır. Biri devreden geçen akım bir diğeri de faz farkı. Bu iki fiziksel parametreden malzemenin iletkenliği ve kapasitesi belirlenir. Ancak bu iki parametre malzemede gerçekleşen olayları açıklamada yetersiz kalırlar. Bu yüzden sadece bu iki

parametreden çeşitli hesaplamalarla elde edilen ve çeşitli olayları açıklamak için temelde 4 farklı formalizm kullanılır.

- 1- Dielektrik geçirgenlik formalizmi
- 2- Elektrik modülü formalizmi
- 3- Empedans formalizmi
- 4- Admitans formalizmi

Bu formalizmler arası geçişleri özetlersek $\omega = 2\pi f$, d plakalar arası mesafe ve

A da plakaların yüzey alanı olmak üzere $C_0 = \frac{\epsilon_0 A}{d}$

$$\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon'' \quad \epsilon' = \frac{C}{C_0} \quad \epsilon'' = \frac{\sigma}{\omega C_0} \quad \text{dielektrik geçirgenlik formalizmi (2.53)}$$

$$M^* = \frac{1}{\epsilon^*} \quad M' = \frac{\epsilon'}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad M'' = \frac{\epsilon''}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad \text{Elektrik modülü formalizmi (2.54)}$$

$$Z = \frac{1}{i\omega} \frac{1}{\epsilon^*} \quad Z = \frac{M^*}{i\omega} \quad \text{Empedans formalizmi}$$

$$Y^* = \frac{1}{Z^*} \quad Y^* = i\omega C_0 \epsilon^* \quad \text{Admitans formalizmi}$$

Maddelerin elektriksel özelliklerini ölçmenin seri ve paralel olmak üzere iki modu vardır. Seri modda empedans (Z) ölçülürken paralel modda admitans Y ölçülür. Empedans;

$$Z^* = R_s - iX_s$$

Burada R_s seri direnci ve X_s seri reaktansdır.

Bu tezde olayları açıklamamızda yeterli oldukları için sadece dielektrik ve modülü formalizmini kullanacağız. [Kwaha,2009]

2.1.8 Debye Olmayan Durulma Süreçleri

2.1.8.1 Cole-Cole Denklemi

$\varepsilon(\omega)$ için ilk ampirik ifadeyi 1941 de K.S. Cole ve R.H.Cole tarafından verilmiştir. Aşağıdaki denklemde $\alpha=0$ alındığında Debye ifadesine dönüşür.

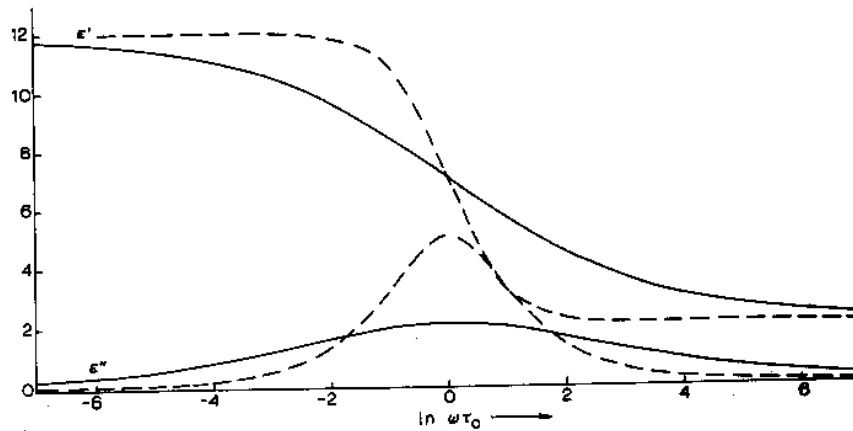
$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty})}{1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha}} \quad 0 \leq \alpha < 1$$

Bu ifadeyi reel ve imajiner kısımlarına ayırırsak

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \frac{1 + (\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi}{1 + 2(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi + (\omega\tau_0)^{2(1-\alpha)}} \quad (2.55)$$

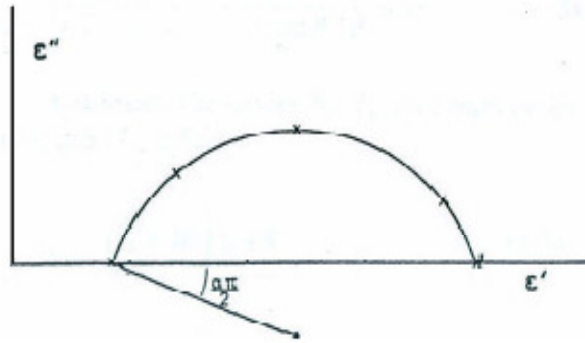
$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \frac{(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \cos \frac{1}{2} \alpha\pi}{1 + 2(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi + (\omega\tau_0)^{2(1-\alpha)}} \quad (2.56)$$

elde ederiz. [Keleş,2006]



Şekil 2.19 Cole-Cole ($\alpha=0.5$) ve Debye denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri

Eğer sistemde tek bir relaksatör yoksa Şekil 2.19 deki dispersiyon eğrisinde de görüldüğü gibi dielektrik geçirgenliklerin formu kesik çizgilerle gösterilen Debye formundan farklılaşacak ve daha yayılmış bir form alacaktır. Aynı şekilde, Şekil 2.21 deki gibi kurulan Cole-Cole diyagramında, çemberin merkezi, eksenin altında olacaktır. Bu durumda yarım dairenin merkezi yatay ekseninden aşağı doğru uzanır. Şekilde, rezonans frekansında maksimum iken, düşey eksene göre simetriktir. Dairesel yay, her iki taraftan da bir açı ile eksenı keser.



Şekil 2.20 α parametrelili Cole-Cole denklemi için Cole-Cole diyagramı [Keleş ,2006]

Böyle bir durumda bilgisayar programları yardımıyla gerek Cole-Cole dağılımı, gerekse aşağıda bahsedilen diğer dağılımlar teker teker denenerek oluşan forma uygun olan dağılım belirlenir. Böylece durulma süreci ile ilgili bilgi elde edilebilir.

2.1.8.2 Cole-Davidson Denklemi

1950 de Davidson – Cole $\varepsilon^*(\omega)$ için başka bir ifade önerdiler.

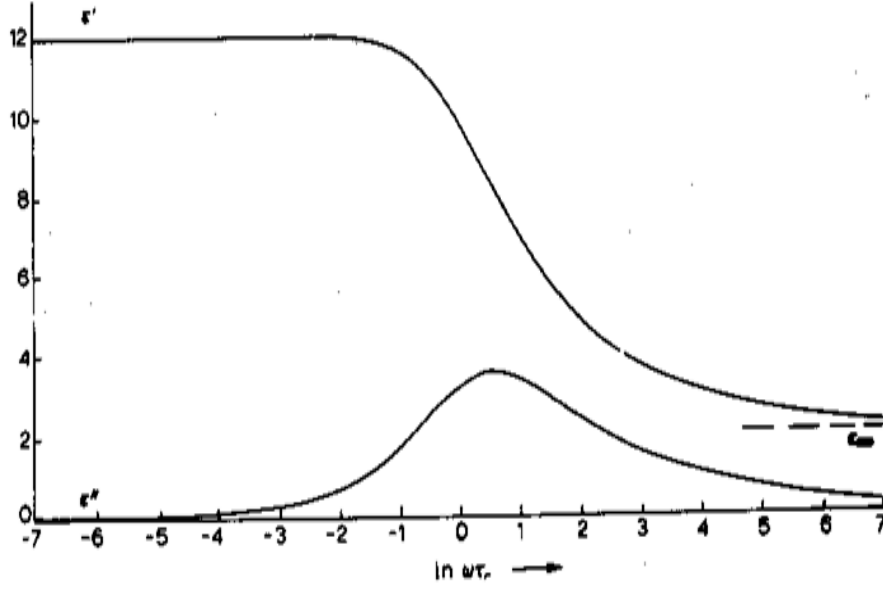
$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty})}{(1 + i\omega\tau_0)^{\beta}} \quad 0 < \beta \leq 1 \quad (2.57)$$

Yine bu denklemde $\beta=1$ için Debye formülü elde edilir. Burada $1 + i\omega\tau_0 = e^{i\varphi} \sqrt{1 + \omega^2\tau_0^2} = e^{i\varphi} / \cos \varphi$ ve $\varphi = \arctg \omega\tau_0$ olmak üzere reel ve sanal kısımlar ε' ve ε'' kolayca aşağıdaki ifadelerle dönüşür.

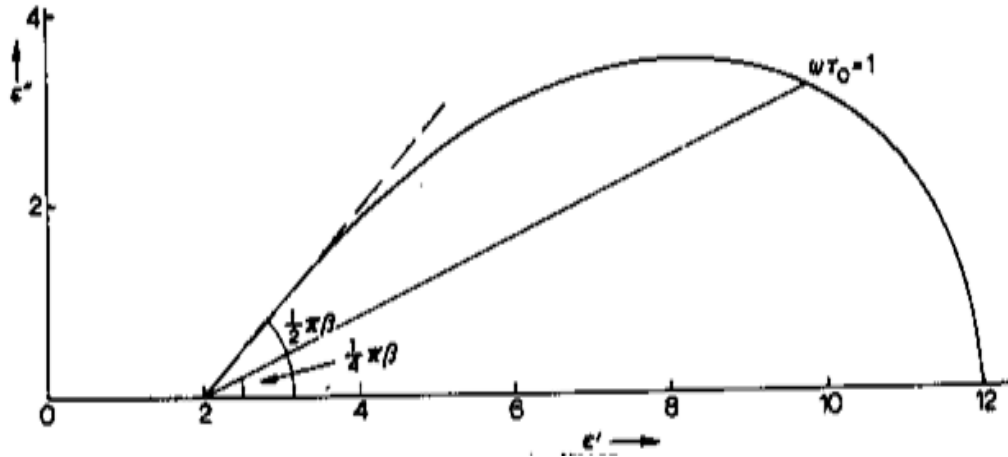
$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \cos \varphi^{\beta} \cos \beta \varphi \quad (2.58)$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \cos \varphi^{\beta} \sin \beta \varphi \quad (2.59)$$

$\tan \varphi = \omega \tau$ verilir. Maksimum kayıpta (ε'') ise, $\omega \tau = 1$ dir. Fakat



Şekil 2.21 Cole-Devidson ($\beta=0.5$) denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri



Şekil 2.22 Cole-Devidson ($\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı

$$\omega_{\max} \tau = \tan \left(\frac{1}{\beta+1} \frac{\pi}{2} \right)$$

ile kullanılır. Burada ω_{\max} , maksimum kaybın açısal frekansıdır. [Keleş ,2006]

Şekil 2.21 de dispersiyon ve kayıp eğrileri görülmektedir. Ayrıca Şekil 2.22 de oluşan Cole-Cole daha öncekilerden oldukça farklı olduğu görülmektedir. Bu grafiklerde düşük frekanslı bölgeler x eksenin sağında yer alır. Bu şekilde görüldüğü gibi yüksek frekanslı bölgede ikinci bir farklı relaksatör kendini göstermiş ve çember formunu bozmuştur. Yayın, düşük frekanslarda dairesel fakat yüksek frekanslarda düz bir çizgi boyunca yatay eksene yaklaştığını ifade eder. Bu çizgi ile yatay ekseni arasındaki açı $\beta\pi/2$ dir.

2.1.8.3 Havriliak-Negami Denklemi

Havriliak-Negami denklemi, dielektrik durulma süreçlerinde Debye, Cole-Cole, Cole-Davidson ya da her ikisinin de birden etkili olup olmadığını belirlemekte kullanılabilir. Bu durumda kompleks geçirgenlik; . [Keleş,2006]

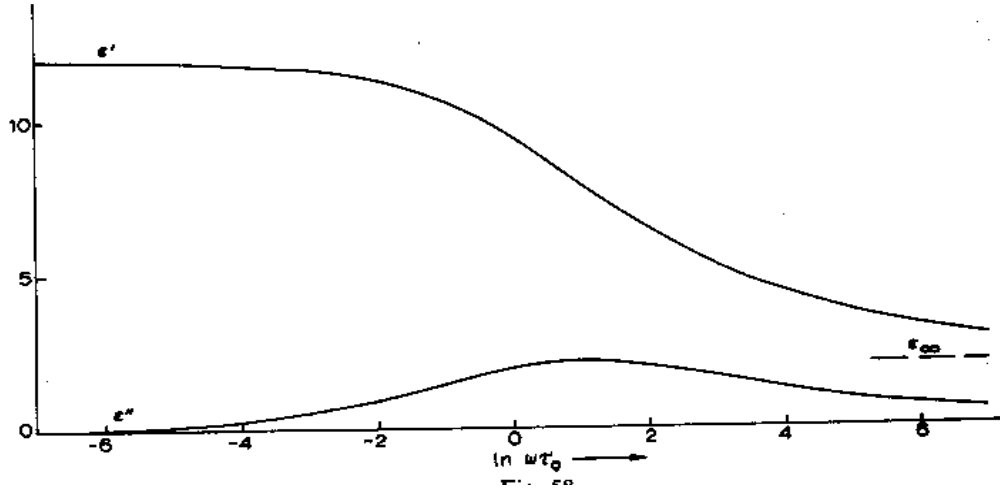
$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty})}{\left[1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha}\right]^{\beta}} \quad (2.60)$$

Burada, $\beta=1$ ve $\alpha=0$ Debye , $\beta=1$ $\alpha \neq 0$ için Cole-Cole , $\alpha=0$ $\beta \neq 1$ için Cole-Davidson süreçleri test edilebilir. Denklem 2.60 ı reel ve sanal kısma ayırırsak,

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \frac{1 + (\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi}{1 + 2(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi + (\omega\tau_0)^{2(1-\alpha)}} \quad (2.61)$$

$$\varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \frac{\sin \beta\varphi}{\{1 + 2(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \alpha\pi + (\omega\tau_0)^{2(1-\alpha)}\}^{\beta/2}} \quad (2.62)$$

$$\varphi = \frac{\arctg[(\omega\tau_0)^{1-\alpha} \cos \frac{1}{2} \pi\alpha]}{1 + (\omega\tau_0)^{1-\alpha} \sin \frac{1}{2} \pi\alpha} \quad (2.63)$$

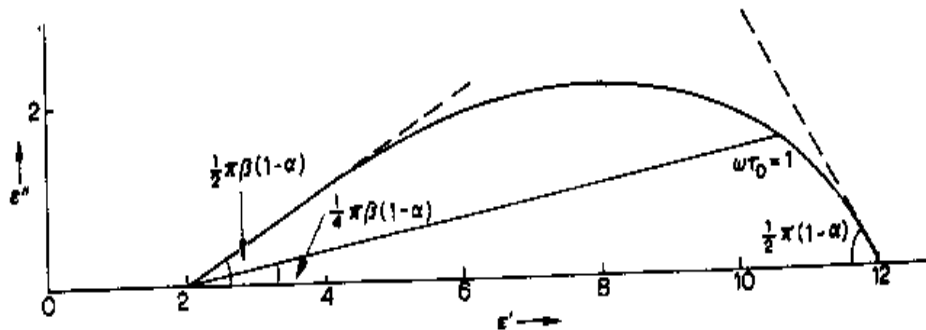


Şekil 2.23 Havriliak-Negami ($\alpha=1/3$ $\beta=0.5$) denklemi için dispersiyon ve kayıp eğrileri

Bona ve arkadaşları Havriliak-Negami denklemine, iletkenliği açısıl frekansa bağlayan kuvvet yasasının etkisini ekleyerek aşağıdaki geçirgenlik ifadesini elde etmiştir [Bona et al., 2001].

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{[1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha}]^\beta} + \frac{\sigma(i\omega)^n}{i\omega\varepsilon_0} \quad (2.64)$$

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{[1 + (i\omega\tau_0)^{1-\alpha}]^\beta} - \frac{(i\omega)^{n-1}}{\varepsilon_0} \sigma \quad (2.65)$$



Şekil 2.24 Havriliak-Negami ($\alpha=1/3$ $\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı

2.1.8.4 Fuoss-Kirkwood İfadesi

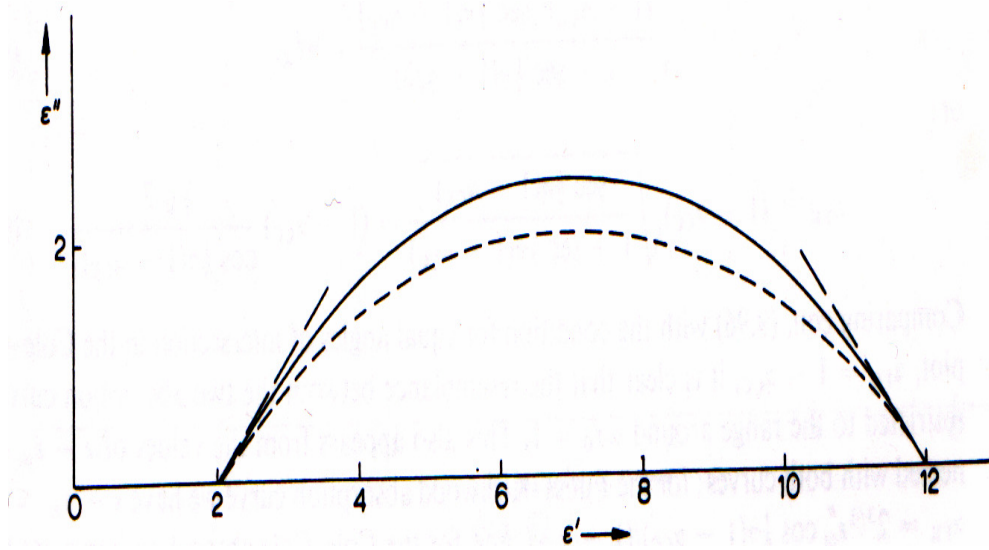
Fuoss and Kirkwood tek durulama zamanı olan sistemler için $\epsilon''(\omega)$ in aşağıdaki gibi yazılabileceğini önerdiler.

$$\epsilon''(\omega) = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\omega\tau_0}{1 + \omega^2\tau_0^2} = \epsilon_m'' \operatorname{sech}(\alpha \ln \omega\tau_0) \quad (2.66)$$

$$\epsilon_m'' = \frac{1}{2}(\epsilon_s - \epsilon_\infty) \quad (2.67)$$

Yukarıdaki ifade aşağıdaki gibi yazılabilir.

$$\epsilon''(\omega) = \frac{\epsilon_m''}{(\omega/\omega_0)^{-\alpha} + (\omega/\omega_0)^\alpha} \quad (2.68)$$

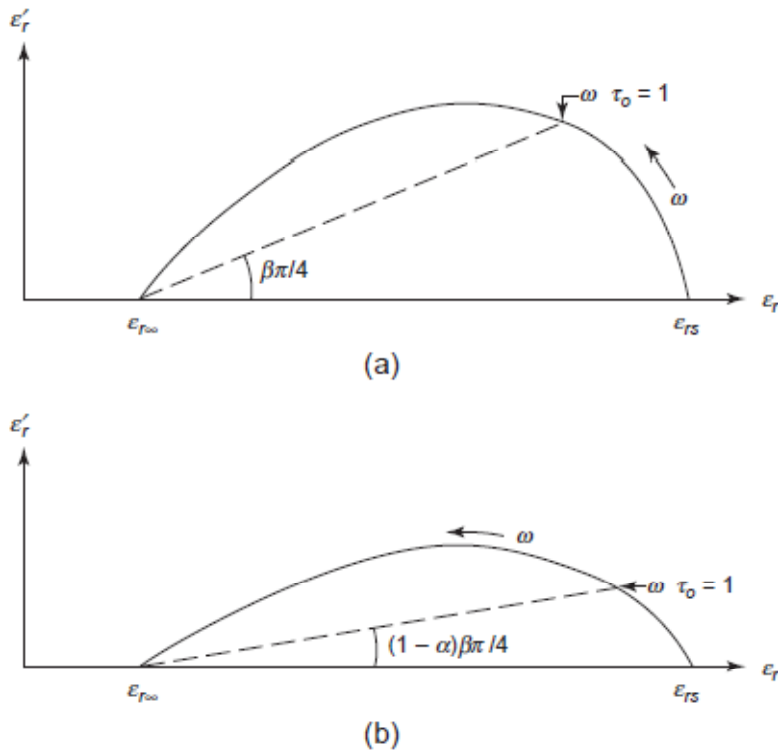


Şekil 2.25 Fuoss-Kirkwood($\alpha_{fk}=0.5$ α_{cc} $\beta=0.5$) denklemi için Cole-Cole diyagramı

Tüm bu denklemler $0 < \alpha < 1$ ve $0 < \beta < 1$ aralığında seçilen α ve β değerlerine bağlıdır. Burada Cole-Davidson denklemi $\beta = 1$ için Debye denklemine dönüştüğü görülmektedir. Fakat $\beta < 1$ durumunda $\epsilon - \epsilon'$ Şekil 2-35(a) görüldüğü gibi asimetrik

olacaktır. Ancak Havriliak-Negami denklemi ise deneysel sonuçlar ile α ve β değerlerinin uygun seçilmesi durumunda en iyi sonucu verir. $\epsilon' - \epsilon''$ yayı $\alpha=2/3$ ve $\beta=1/2$ Şekil 2-35(b) de görülmektedir.

Havriliak-Negami denklemindeki α ve β parametreleri dielektrik polarizasyonda fiziksel bir temele bağlı değildir. Bu parametreler orijinal Cole-Cole denkleminin deneysel sonuçlar uygun hale getirmek için ampirik olarak ortaya konmuştur. Bu değişiklik durulma zamanının arkasındaki fiziği daha iyi anlaşılmasına yol açmaz. Fuoss ve Kirkwood (1941) da dielektrik geçirgenliğin sadece sanal kısmı frekans ile davranışı ile ilgili, Fuoss-Kirkwood denklemi denilen yine yarı-ampirik bir denklem ortaya koydular.



Şekil 2.26 $\beta=0.5$ için Davidson-Cole (a), $\alpha=1/3$ $\beta=0.5$ Havriliak-Negami

$$\epsilon'(\omega) = \frac{2\epsilon'_{\max}}{(\omega\tau)^\lambda + (\omega\tau)^{-\lambda}} \quad (2.69)$$

Burada λ , $0 < \lambda < 1$ aralığındadır ve ϵ'_{\max} , $\omega\tau = 1$ deki maksimum kayıp faktörüdür. Logaritmik frekans ölçeğinde, $\epsilon' - (\ln \omega)$ grafiği $\omega\tau = 1$ de simetrik çan şeklinde bir

eğri sergiler. Bu eğri ile ilgili Debye eğrisinden daha geniştir fakat Cole-Cole denkleminde çok benzerdir.

2.1.9 Elektriksel Modülü Formalizmi

Dielektrik spektrumu yorumlamak için kompleks geçirgenlik $\epsilon^*(\omega)$, kompleks elektrik modülü $M^*(\omega)$, kompleks empedans $Z^*(\omega)$ gibi farklı formalizmler türetilmiştir. Bu formalizmlerden $M^*(\omega)$ formalizminin en önemli avantajı, elektrot etkisinin ortadan kaldırılabilmesidir.

Genel olarak iletken katkılı sistemlerde, ara yüzeysel kutuplanma, iletkenlikten dolayı belirsizleşir. Yüksek olabilen dielektrik geçirgenlik ve iletkenlik yüzünden ara yüzeysel durulma görülmeyebilir. McCrum ve arkadaşları tarafından ortaya atılan “elektrik modülü” formalizmi ile bu zorluğun üstesinden gelinebilmektedir [McCrum et al., 1967]. Elektrik modülü kullanımının diğer bir avantajı da düşük frekanslardaki iletkenlik ve geçirgenliğin büyük değerlerindeki değişiklikleri en aza indirmesidir.

Dağılım fonksiyonları genelde yüksek frekanslı 10^6 Hz gibi MHz ve üstü frekans bölgelerindeki olayları açıklamak için kullanılan dağılımlardır. Yapılan açıklamalarda da görüldüğü gibi oluşan bir Cole-Cole diyagramının ardından bu fonksiyonlar uygulanabiliyor ancak elektronların bir bölgede birikip boşalması gibi yavaş proseslerde pek bir sonuç elde edilemiyor, bunun yerine elektrik modülü denen ve

$M^* = \frac{1}{\epsilon^*}$ olarak tanımlanan dielektrik sabit yerine ondan türetilen bir

fonksiyon kullanılıyor. Bu fonksiyonu da tıpkı dielektrik geçirgenlik gibi reel ve sanal olarak ayırırsak,

$$M' = \frac{\epsilon'}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad (3.6)$$

$$M'' = \frac{\varepsilon''}{(\varepsilon')^2 + (\varepsilon'')^2} \quad (3.7)$$

elde ederiz. Burada da tıpkı Cole-Cole diyagramı gibi elektrik modülünün argand diyagramı denen bir diyagram tekniği ile böyle yavaş çalışan proseslerin durulma zamanlarını bulmak mümkün olmaktadır.

Burada M' , reel ve M'' , sanal elektrik modülleridir. Bu ifadede $\omega \rightarrow 0$ iken M' 'nün değeri M_s , $\omega \rightarrow \infty$ iken M_∞ olarak alınırsa bu ifade

$$M_s = \frac{1}{\varepsilon_s} \quad M_\infty = \frac{1}{\varepsilon_\infty}$$

şeklinde yazılabilir. Elektrik modülü formalizmine göre durulma süreçlerini (Debye, Cole-Cole, Cole-Davidson, Havriliak-Negami ve MWS (ara yüzeysel)) tek tek yazabiliriz. Bu ifadeler oldukça uzun matematiksel işlemlere dayanmaktadır. Bu yüzden örnek olması açısından en basit olan bir örnekle yetinilecektir.

2.1.9.1 Debye Denklemi

Geçirgenlik moduna göre tanımlanmış denklem Debye $\varepsilon^* = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{1 + i\omega\tau}$, ün tersi alınarak Debye eşitliğinin elektrik modülü

$$M^* = \frac{1}{\varepsilon^*}$$

$$M = \frac{1}{\varepsilon_\infty (1 + i\omega\tau) + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)} \quad \text{ve} \quad \varepsilon_s = \frac{1}{M_s} \quad \varepsilon_\infty = \frac{1}{M_\infty} \text{ kullanarak}$$

$$M = \frac{1}{\frac{1}{M_\infty} (1 + i\omega\tau) + \left(\frac{1}{M_s} - \frac{1}{M_\infty} \right)}$$

$$M = \frac{M_s M_\infty}{M_s (1 + i\omega\tau) + (M_\infty - M_s)}$$

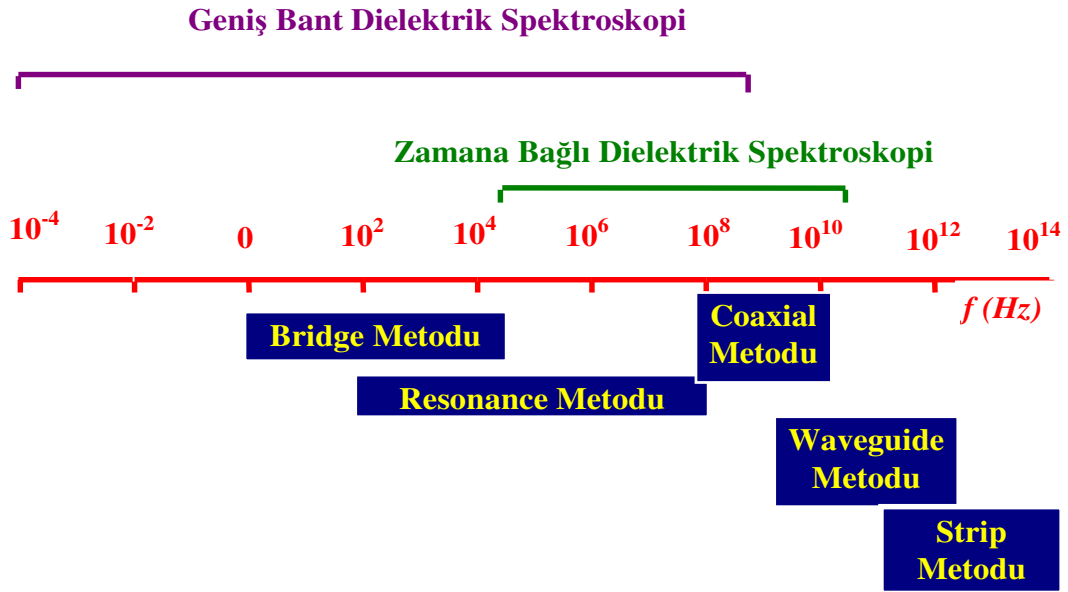
şeklindedir. Bu ifadeyi reel ve imajiner kısımlarına ayırırsak

$$M' = M_\infty M_s + \frac{M_\infty + M_s \omega^2 \tau^2}{M_\infty^2 + M_s^2 \omega^2 \tau^2} \quad M'' = M_\infty M_s + \frac{(M_\infty - M_s) \omega \tau}{M_\infty^2 + M_s^2 \omega^2 \tau^2}$$

elde ederiz. [Keleş, 2006]

3 DIELEKTRİK SPEKTROSKOPİ YÖNTEMİ

Dielektrik spektroskopisi yöntemi uygulamalarında, araştırılmak istenen kutuplanma süreçlerine, dolayısıyla frekans aralığına göre farklı metotlar kullanılır. Şekil 3.1 de frekans aralığına göre kullanılan metodular gösterilmiştir.

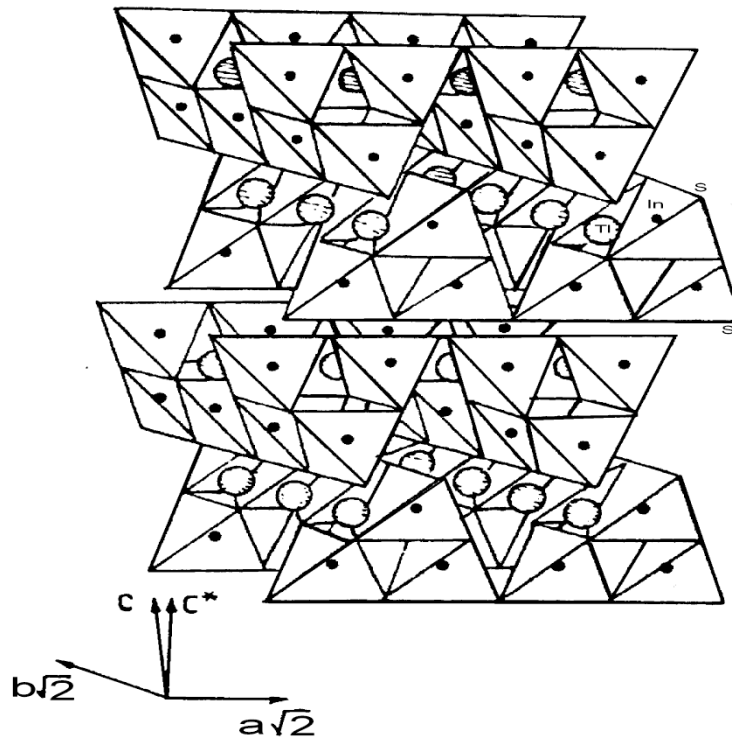


Şekil 3.1 Geniş bant dielektrik spektroskopisinde bant aralığına göre kullanılan metodlar

3.1 Katmanlı $A^3B^3C_2^6$ Kristallerinin Üretim Teknolojileri ve Yapısı

$A^3B^3C_2^6$ Katmanlı kristalleri, Bridgman Teknolojisi yöntemi ile elde edilmektedir. Bunun için gerekli elementler eşdeğer molekül oranında tartılarak kuartz ampul içine yerleştirilir. Bu ampulün uç kısmı oldukça ince ve orta kısım ise boğumludur. Kristalleşme uç kısımdan başlar. Ampul difüzyon pompası yardımı ile $10^{-5}, 10^{-6}$ Atm. basınca kadar havası boşaltılıp vakum haline getirilir. Ampul içinde, önce yaklaşık 950 °C altında bir ön sentez yapılarak polikristal malzeme şekli oluşması sağlanır. Ön sentezden sonra ampul değişken (gradyent) sıcaklık alanına sahip fırına yerleştirilir. Fırın, yüksek sıcaklıktan düşük sıcaklığa doğru sıralanmış üç

bölgeden oluşmaktadır. İlk olarak ampul yüksek sıcaklık bölgesine yerleştirilerek maddelerin erimesi sağlanır ve bu bölgede bir veya iki gün bekletilir. Daha sonra fırın özel mekanizma aracılığıyla saatte 1-2 mm hızla hareket ettirilerek ampul daha düşük sıcaklıktaki 2. bölgeye geçirilir. Kristalleşme ilk olarak 2. bölgeye giren ampulün sivri olan ucunda başlar ve böylece bir kristalizasyon merkezi oluşur. Ampul sürekli olarak soğuk bölgeye geçtiğinde kristalleşme bütün hacme yayılır. Ampul bir sonraki bölme olan daha düşük sıcaklığa sahip üçüncü bölmeye geçtiğinde büyütülmüş kristal basamaklı olarak tavlanmaktadır. Böylece kristal büyütme sürecinin tamamı yaklaşık 5-6 gün sürmektedir.



Şekil 3.2 TIInS₂ kristalinin yapısı [Henkel et al,1982]

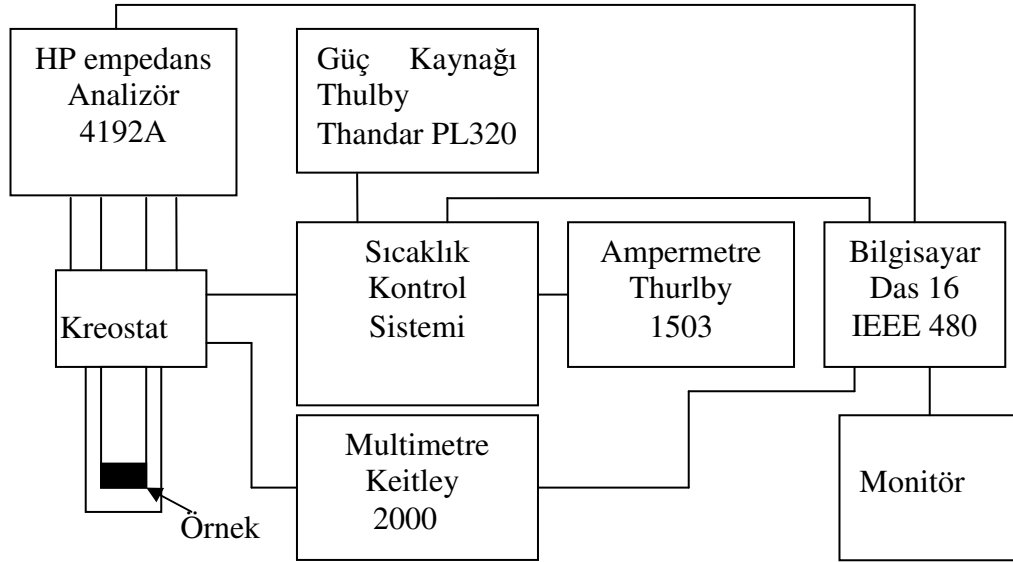
Katmanlı yapıya sahip $A^3B^3C_2^6$ kristal ailesinden olan TIInS₂ kristalinin yapısı Şekil 3.2 de görülmektedir [Hoccheimer et al, 1981]. Buna Göre TI atomları katmanlar arası tetrahedrik boşluklarda yer alır. Bir katın InS₄ tetrahedrik zincirleri, diğer katın zincirlerine diktir. TIInS₂ kristalinde TI ve In atomları 3A, S atomu ise 6A grubu elementleridir. Bundan dolayı $A^3B^3C_2^6$ ailesine dâhil edilir. Kristal simetrisi C_{2h}^6 olan monoklinik grup simetrisine sahiptir. Elemanter hücre ise iki ardışık kattan

oluşur. Uzak grup simetrisi ise noktasal grup simetrisinin 6 dönme işleminden sonra elemanter hücrenin tekrarlandığını ifade etmektedir.

TlGaSe₂ kristali ve TlGaS₂ Katmanlı Kristalleri de TlInS₂ kristaline benzer yapıya sahiptir. Son bilimsel araştırmalar [McMorrow, et. al. ,1990],[Özdemir et. al, 1995], [Mikailov, et. al., 2001], [Başaran, et. al. 2002] gösteriyor ki bu kristaller arasında çok azda olsa bir fark vardır. Bu fark sonuçları incelerken daha detaylı irdelenecektir

3.2 Deneysel Düzenekler

TlInS₂ ve TlGaSe₂ tek kristalleri yüksek saflıkta (en az% 99.999) stokiyometrik oranlarda alınan elementler hazırlanmıştır. Tek kristaller geliştirilmiş Bridgman-Stockberger yöntemi ile eritilerek büyütülmüştür. Ölçümünde kullanılan örnekler başlangıçta yüksek dirençli (>10⁶ cm 300 K) katkısız P-tipi tek kristalleridir. Yüzeyleri birbirine paralel numunelerin farklı boyutlardadır.

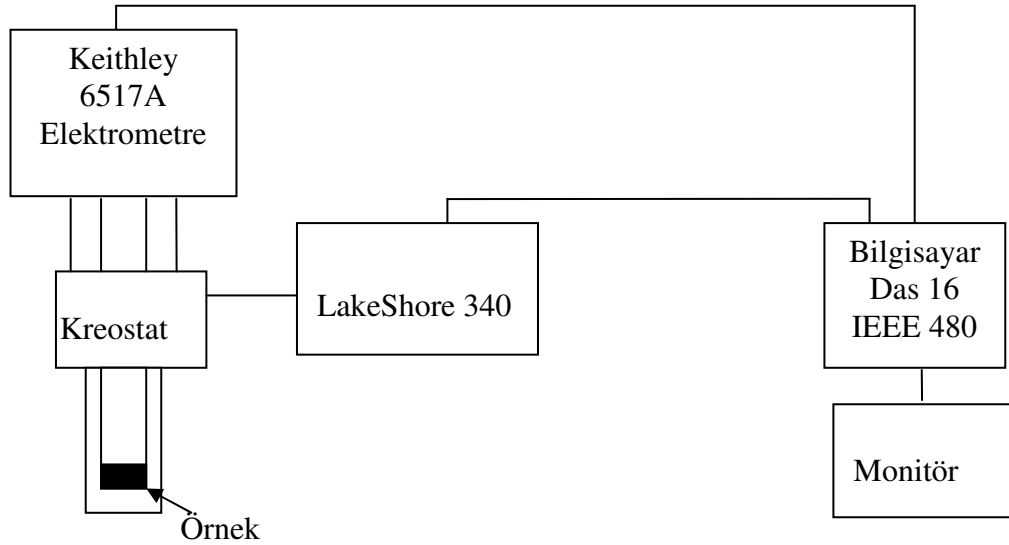


Şekil 3.3 Dielektrik ölçümlerinde kullanılan deney düzeneği şeması

Kompleks dielektrik geçirgenlik $\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon''$ katmanlara dik ve paralel 30 Hz-13 MHz frekans aralığında bir kapasite köprü HP 4192A empedans analizörü ile

ölçüldü. Düzenekte frekanslar otomatik olarak 48 farklı değerde çevrimsel olarak tarandı. Örnek yüksek frekanslarda ölçüm yapmak için tüm dış etkilerden yalıtılmış ve topraklanmış bir sistemde incelendi. Örnek bir kreostat içine soğuk bir çubuk üzerine monte edildi. Kreostat sistemi sıcaklığı 80K ile 500K arasında değerler alabilmektedir. Sıcaklık Cu-Cn termo-çift aracı ile ölçülmüştür. Sıcaklık verileri Keithley multimetre'den bilgisayara Das 16 ve IEEE 480 kartı aracılığı ile aktarılmıştır (Şekil 3.3)

Numuneler ölçüm için paralel yüzlü kapasitör şeklinde hazırlanmıştır. Yüzeyler optiksel kaliteye kadar parlatılmıştır. Elektriksel kontaklar kristal yüzeylerinin her iki tarafında yüksek vakum altında altın buharlaştırılarak yapılmıştır. Elektrotlara ince bakır teller küçük gümüş pastası damlacıkları ile bağlanmıştır. Ölçümler kristal katlarına dik ve paralel yönlerde yapılmıştır.



Şekil 3.4 I-V ölçümlerinde kullanılan deney düzeneği şeması

Akım-gerilim karakteristikleri belirli akım bölgesi taranarak, izotermal şartlarda Keithley 6517A elektrometresi ile ölçüldü. Elektrometre tarafından minimum akım 0.1 pA olarak kaydedildi. Numuneye uygulanan gerilim -15;+15 V aralığındadır. Tüm ölçümlerde 300 K sıcaklıkta kontakların I-V karakteristiği ile doğrulanarak Omik doğada lineer ve simetrik olduğu tespit edildi. Ölçümler 80-300

K sıcaklık aralığında LakeShore 340 model sıcaklık kontrolörü tarafından DT-670B silikon diyot yardımıyla yapıldı. Deney düzeneği tamamen bilgisayar kontrolü altında gerçekleşmiştir.

3.3 Dielektrik Geçirgenliğin Hesaplanması

Bölüm 3.1 de bahsedildiği gibi bilgisayar aracılığı ile elde edilen kapasitans (c) ve iletkenlik (σ) verileri, belirli sıcaklıklarda seçilmiş 48 farklı frekans değerini kapsayacak şekilde gruplandırıldı.

Öncelikle $\log(\sigma) - \log(\omega)$ grafikleri elde edildi. Her bir sıcaklık değeri için elde edilen bu grafiklerden $s = \log(\sigma) / \log(\omega)$ değerleri matlabda hazırlanan bir program vasıtasıyla hesaplandı.

Ardından aktivasyon enerjisinin belirlenmesi için $\log(\sigma) - \log(1000/T)$ grafiği oluşturuldu. Buradaki yüksek sıcaklıklardaki eğim kullanılarak her bir kristalin aktivasyon enerjisi $\sigma = \frac{\sigma_0}{T} e^{-\frac{E}{kT}}$ uygun olarak belirlendi.

ϵ' ve ϵ'' grafiklerini elde etmek için 2.53 bağıntıları kullanıldı. Daha sonra Cole-Cole diyagramları çizilerek mümkün olan maksimumlarından durulma zamanları elde edildi.

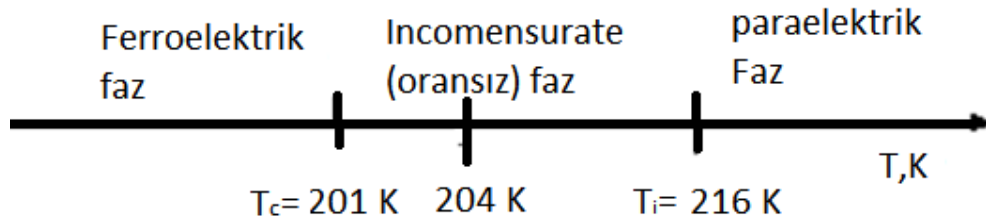
Elektriksel modülü bağıntılarını elde etmek için 2,54 bağıntıları kullanıldı. Elektriksel modüleri ile argan diyagramları çizilerek yazılan bir matlab programı ile maksimuma karşılık gelen frekanslardan durulma zamanları elde edildi ve daha sonra burada Voger-Fulcher bağıntısı kullanılarak durulma süreçlerine ait aktivasyon enerjisi ve camsı geçiş sıcaklıkları belirlendi.

4 DENEYSEL SONUÇLAR VE DEĞERLENDİRMELER

4.1 TIInS₂ Kristali İle İlgili Önceki Çalışmalarda Elde Edilen Bulgulara Genel Bir Bakış

$A^3B^3C_2^6$ kristallerinde yapısal faz geçişlerinin varlığının bulunması 80'li yılların başına rastlar. Bu araştırmaların sonucu olarak [Vakrushev et. al. 1984] katmanlı kristallerin noktasal grup simetrisinin C_{2h} dan C_2 noktasal gruba geçişi düşük sıcaklıklar bölgesinde tespit edilmiştir. 80'li yılların ortasında Raman saçılması incelemesinde $A^3B^3C_2^6$ kristallerinde TIInS₂ ve TIGaSe₂ Raman aktif enine optiksel modun yumuşamasını gözlemlenmiştir. Bu gözlemlerden sonra ortaya çıkan önemli sonuçlardan birisi bu kristallerde ferroelektrik fazların meydana geldiğinin anlaşılmasıdır [Aliev et. al. , 1984].

Nötron saçılması incelemesi sonucunda bu kristallerde sadece ferroelektrik faz değil sıcaklık düştükçe ferroelektrik fazdan önce oransız (incomensurate) fazın meydana gelmesi gözlenmiştir.[Strukov and Levanyuk,1997], [Vakrushev et. al. , 1984] Dolayısıyla ardışık faz geçişleri TIInS₂ kristalinde sıcaklık ekseninde Şekil 4.1 de ki gibi gösterilebilir.



Şekil 4.1 TIInS₂ kristalinin faz geçiş diyagramı

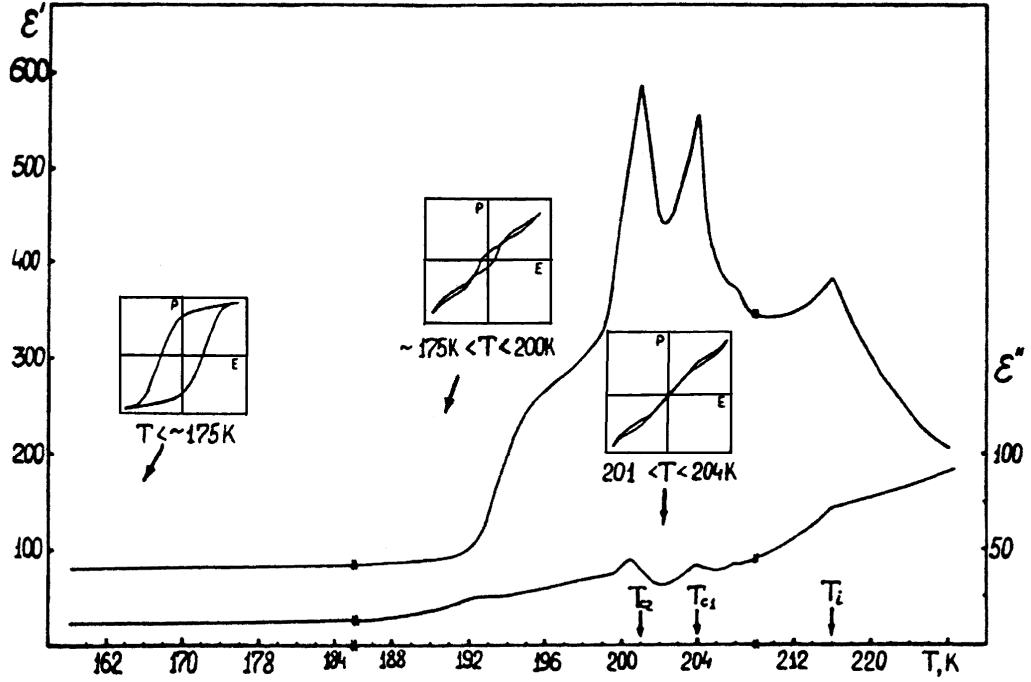
Bu ardışıklık 1985 – 1986 yıllarında bulunmuştur. 80'li yıllarda, oransız fazların ferroelektrik kristallerde oluşması, katıhal fiziğinin önemli ilgi alanlarından birisidir ve birçok kristal yapıda değişik uzunlukta periyodik yapıya sahip oransız

fazlar bulunmuştur. $TlInS_2$ kristalinde oransızlık değeri karakterize eden $\delta = 0,02$ kadardır ki, bilinen oransız fazlara sahip diğer kristallerin 3-4 katı kadar azdır. Oransızlık dalga vektörü katmanlara paralel yönde $q_{iu} = (0;0;0,25)$ dir. Yani elemanter hücre dört kat büyümektedir.

Ayrıntılı şekilde yapılan dielektrik incelemelerde Şekil 4.1 de gösterilen faz geçişlerin ardışıklığı daima karışık bir şekilde ortaya çıkarmıştır [Salaev et al, 1992]. Diğer bir deyişle ferroelektrik faz geçişinin dışında 201K ve 204K dielektrik geçirgenliğin piki ve 207K 'de ölçekli fazda dielektrik geçirgenliğin bir anomalisi gözlenmiştir. Ferroelektrik fazda ise 196K civarında omuza benzer bir şekilde dielektrik geçirgenliğin davranışı gözlenmiştir. Bu sıraladığımız anomalilerde kendiliğinden kutuplanmanın değişimleri gözlenmiştir (Şekil 4.2). Yani 204K ve 201K arasında anti polar histerisiz döngüleri ortaya çıkmıştır.

Sıcaklık ferroelektrik faz geçişinin altına indiğinde anti polar özelliği ortaya koyan histerisiz döngüleri 3 katlı döngülere dönüşmüştür. 3 katlı döngülerin sıcaklık bölgesi 200K ile 175K aralığında gözlenmektedir bu da 3 katlı histerisiz döngülerin gözlendiği sıcaklık bölgesinde bu kristalde 201K-204K sıcaklığında mevcut olan anti polar fazın polar bölgeleri ile 201K altında ortaya çıkan ferroelektrik fazın polar bölgeleri ile bir arada bulunmalarını ortaya koymaktadır. Yaklaşık olarak 170K-175K altında normal ferroelektrik faza has olan döngü şekline dönüşür. Aynı zamanda “omuz” şeklinde ortaya çıkan dielektrik geçirgenlik, bu sıcaklık aralığında yarı kararlı durumlarının varlığını vurgulayan dielektrik geçirgenliğin davranışı olarak tespit edilmiştir. Isıtma ve soğutma yönlerinde ölçülen dielektrik geçirgenlik birbirini tekrarlamayan bir şekilde birbirine doğru yaklaşmaktadır. Bu durum yarı kararlı durumların gerçekleşmesi için uzun zaman gerektiğini ve dolayısıyla uzun bir durulma zamanının olduğunu göstermektedir. Diğer taraftan bu bölgede, reel dielektrik geçirgenlik (ϵ') farklı frekanslardaki ölçümlerinden durulmada meydana gelen kaymalar gözlenmiştir. Bütün bu sıraladığımız verilere dayanarak ferroelektrik faz geçişin altında en az 2 relaksatörün bir arada olması sonucuna varılmıştır.

Soru: Ne gibi relaksatörler bu kristalde gösterilen sıcaklık bölgesinde (170K-200K) meydana gelebilir?



Şekil 4.2 TIInS₂ kristalinin katmanlara paralel yönde 1 KHz frekanstaki ϵ' ve ϵ'' sıcaklık grafiği.[Salaev,1992]

Bu soruya cevap ise; bu sıcaklık aralığında kristal ferroelektrik fazdadır ve aynı zamanda burada anti polar bir düzen de gözlenmektedir. Demek ki bu sıcaklık aralığında 2 farklı polar alt örgü birbiri ile etkileşerek bir sıcaklık aralığında bulunmaktadır. Bu alt örgülerden birisi ferroelektrik diğeri ise anti polar alt örgülerdir. Dielektrik özelliklerin incelenmesi sonucu bir diğer sıra dışı davranışı oransız fazlara has olan bir özelliktir. TIInS₂ ve TlGaSe₂ kristalinde [Babaev et al, 2005] oransız fazda (memory effect) hafıza olayı gözlenmiştir. Hafıza olayı dielektrik geçirgenlikte sıcaklık değişiminde oransız fazda anomali şeklinde ortaya çıkmıştır. Bu hafıza olayına bağlı olarak oransız faz geçişin sıcaklığı T_i ve ferroelektrik faz geçişin sıcaklığı T_c sıcaklıklarının farklı kaymaları ortaya konmuştur. Gözlenen fiziksel olay kusurlar yoğunluğun dalgalanması modeli ile açıklanmıştır. Yani oransız fazda kusurlar yoğunluğu dalgası bu faza has olan modülasyon dalgası ile katkı durumlarda yerleşmiş yük taşıyıcılar aracılığıyla etkileşmektedir. Katkı durumlarında yerleşmiş yük yoğunluğu sıcaklıkla aktivite edilen yoğunluktur. Dolayısıyla ısıtma veya soğutma süreçlerinde bu yoğunlukların değişimi faz geçişlerinin sıcaklıklarının kaymasından sorumlu olduğu gösterilmiştir.

4.1.1 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yönde Dielektrik spektroskopi Yöntemiyle İncelenmesi

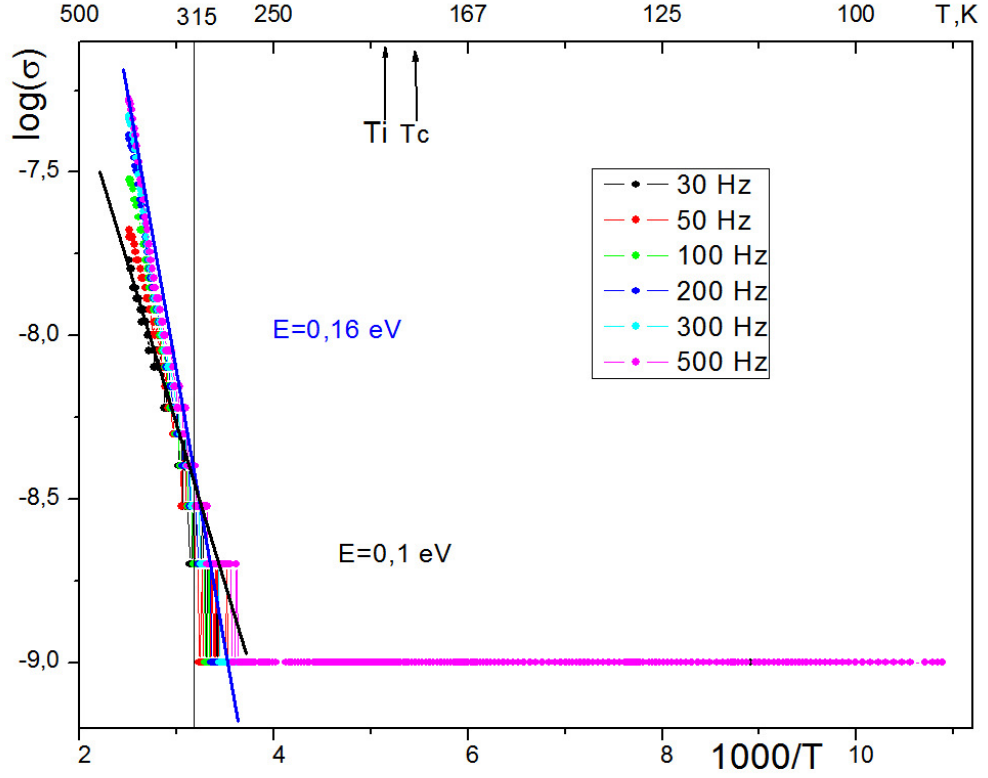
4.1.1.1 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki A.C. İletkenliği

Bu bölümde TlInS₂ kristalinin katmanlara dik A.C. iletkenliğinin sonuçlarını ortaya konmaktadır. Şekil 4.3'de düşük frekanslar (30-500Hz) bölgesindeki iletkenlik gösterilmiştir. Kristal yüksek sıcaklıklara kadar ısıtıldığında şekilde görüldüğü gibi yüksek sıcaklık bölgesinde büyük eğime sahip ve frekanstan kısmen bağımsız bölüm meydana gelmektedir. Bunun sebebiyse bu sıcaklıklarda artık katkı seviyeleri-band geçişler ile iletkenliğe katkı veren yük taşıyıcılarının, iletkenliğe katkı sağlayan diğer tüm mekanizmalara baskın gelmesinden kaynaklanmaktadır. Yaklaşık 315K civarında eğim dikkat çekici bir biçimde belirgin olmaktadır. Böylece 315K civarında kristalde iletkenlik mekanizmasının değiştiğini söyleyebiliriz.

Katıların elektriksel iletkenliğinin sıcaklık bağımlılığı

$$\sigma = Ae^{\frac{-\Delta E}{K_B T}} \quad (4.1)$$

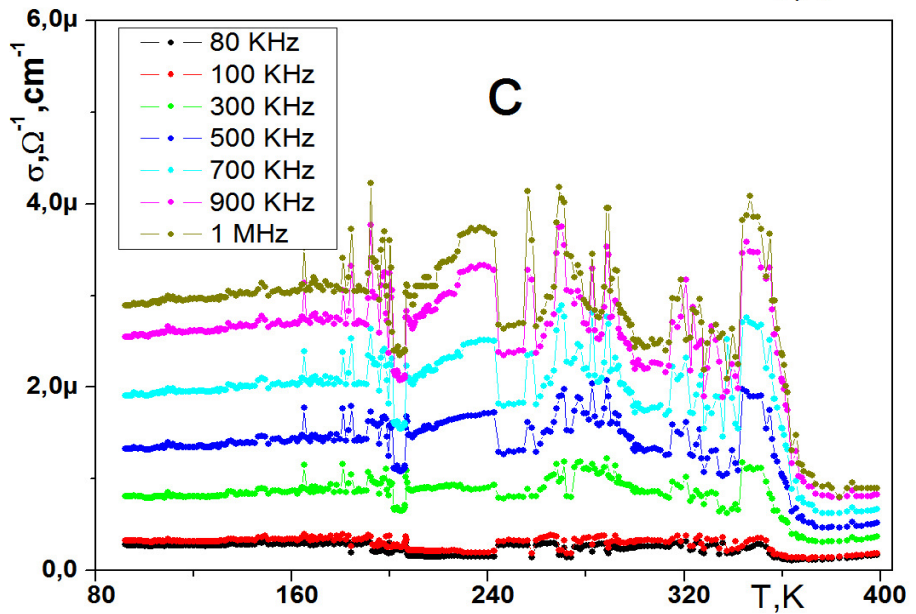
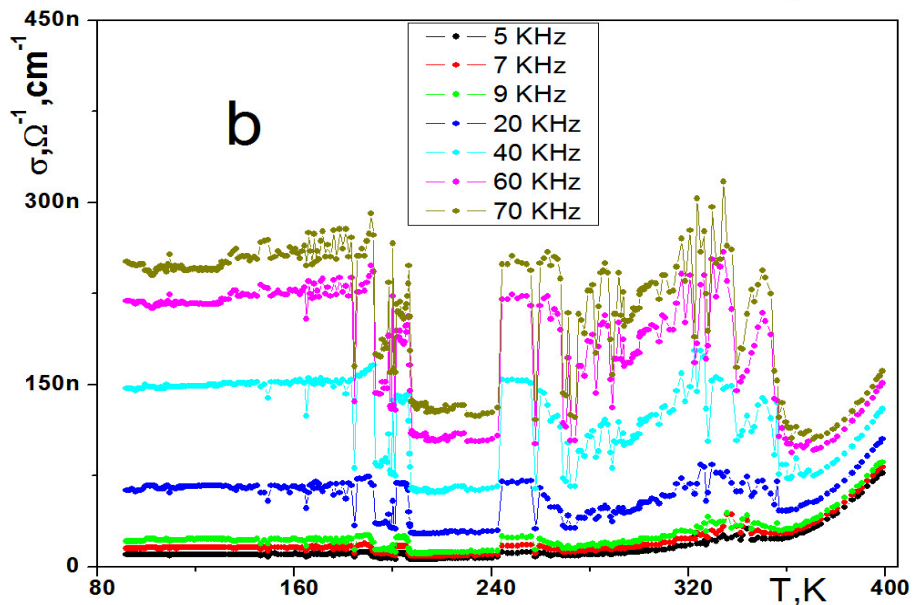
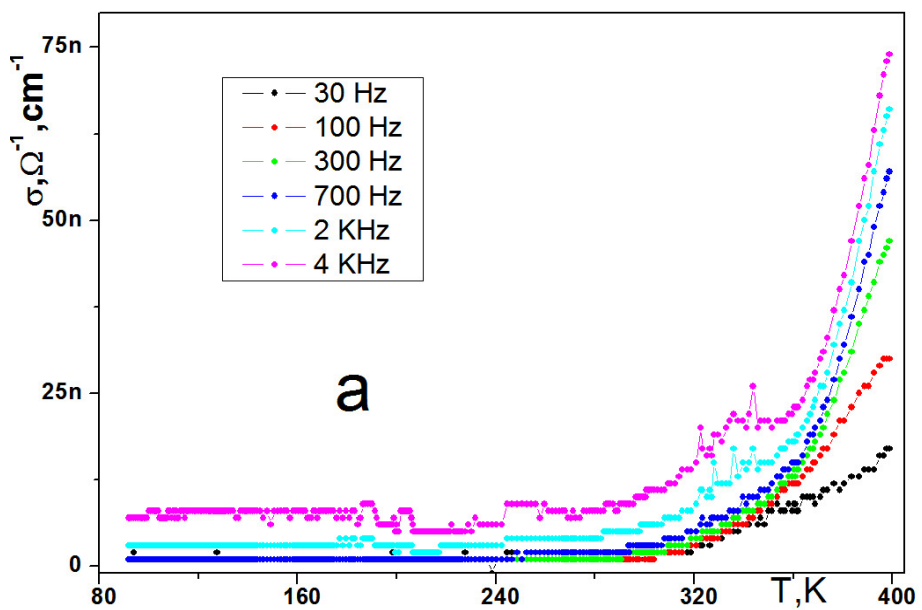
bağıntısıyla ifade edilir. Bu denklemde ΔE aktivasyon enerjisini, K_B Boltzmann sabitini göstermektedir. Bu bağıntıdan aktivasyon enerjisini elde etmek için $1000/T$ grafiği kurulur ve elde edilen eğim $1000 \cdot K_B$ değeri olan -0.08617343 ile çarpılır. Bu bağıntı yardımıyla ölçümdeki en düşük frekans olan 30Hz deki iletkenliğin eğiminden hesap ettiğimiz aktivasyon enerjisi 0,1 eV, 500Hz den hesap ettiğimizde 0,16 eV dur. Buradaki elde edilen enerji değerleri band-band geçişleri için olan değerden oldukça düşüktür. Bu kristallerde bilinen band-band geçişi aktivasyon enerji değerleri 2-3 eV civarındadır [Ghost, 1992]. Bu yüzden bu sıcaklıklarda elde edilen enerji değeri bu sıcaklık bölgesinde iletkenliğin katkı seviyeleri (akseptör) bant geçişleri ne ait bir iletkenlik mekanizması ile gerçekleştiğini göstermektedir. Arıca 300K dan düşük sıcaklıklarda iletkenlik mekanizmasının değiştiği kesin bir dille söylenebilir.

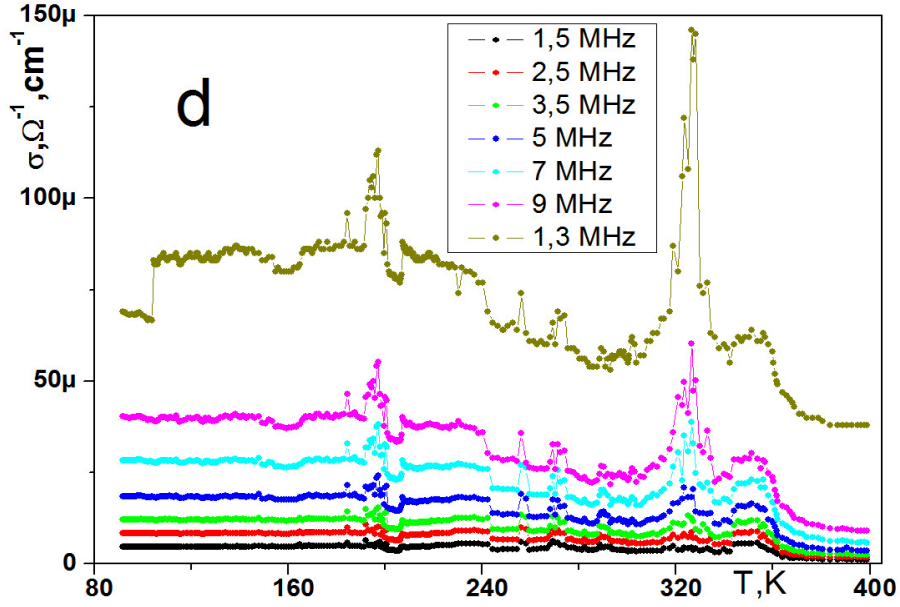


Şekil 4.3 TIInS₂ kristalinin düşük frekans aralığında katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.

Katmanlara dik yöndeki iletkenliğin sıcaklık bağımlılığı Şekil 4.4 de görülmektedir. Bu şekilde ilk dikkati çeken nokta faz geçişlerine ait piklerin görülmemesidir. Bununla birlikte sebebi faz geçişinin katmanlara paralel yönde gerçekleşmesinden kaynaklanmaktadır. Şekilde görüldüğü üzere geniş bir sıcaklık aralığında genel itibariyle iletkenlik sıcaklıkla pek değişmemektedir. 205K-247K arasında özellikle 10KHz- 100KHz frekansları civarında da ani bir düşüş gözlenirken daha yüksek frekanslarda aynı bölgede bir artış gözlenmektedir.

Şekil 4.4a da düşük frekanslarda yine 315K civarında iletkenlikte ani bir artış görülmekte buda yukarıda bahsedilen katkı seviyesi bant geçişine ait davranışın yansımalarını göstermektedir. Bununla birlikte düşük sıcaklıklardaki yük taşıyıcıların mobilitelerinin de azalmasından dolayı iletkenlikte azalmaktadır. Şekil 4.4b,c,d de 315 K civarlarına düşük frekanslardakinin aksine yüksek frekanslarda iletkenlikte bir azalma görülmektedir.



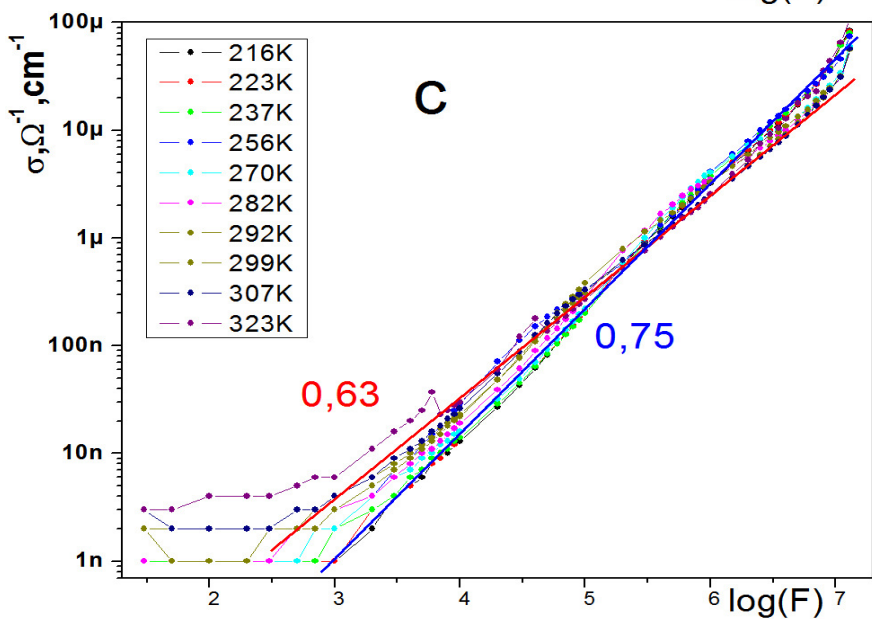
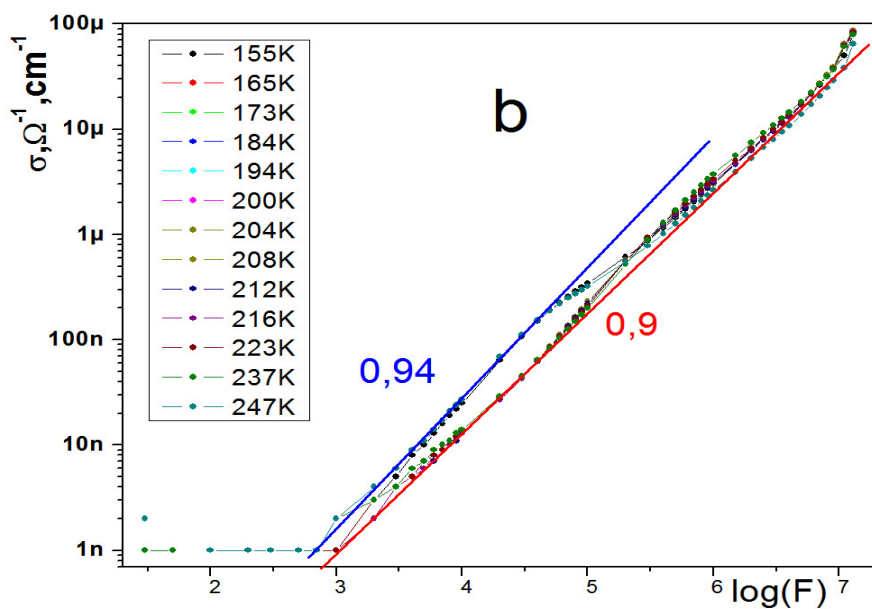
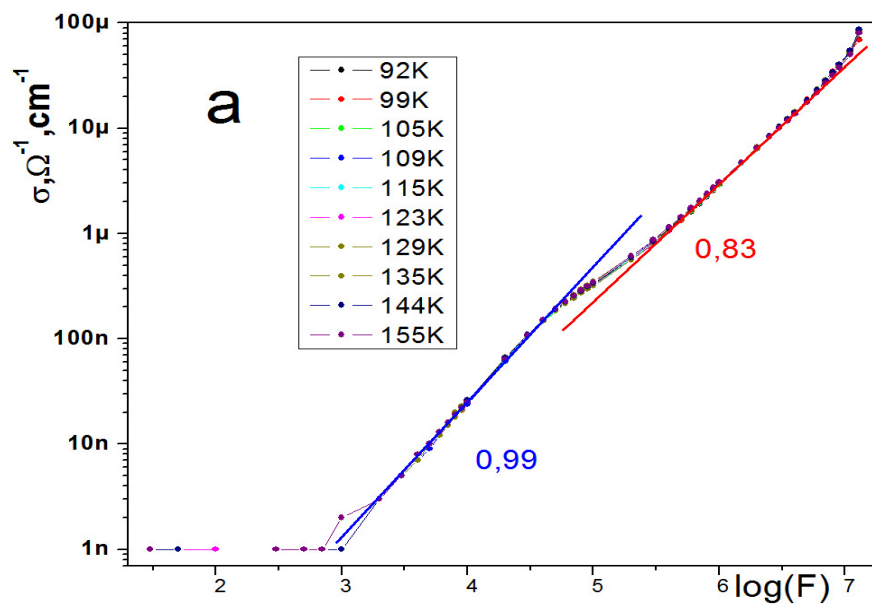


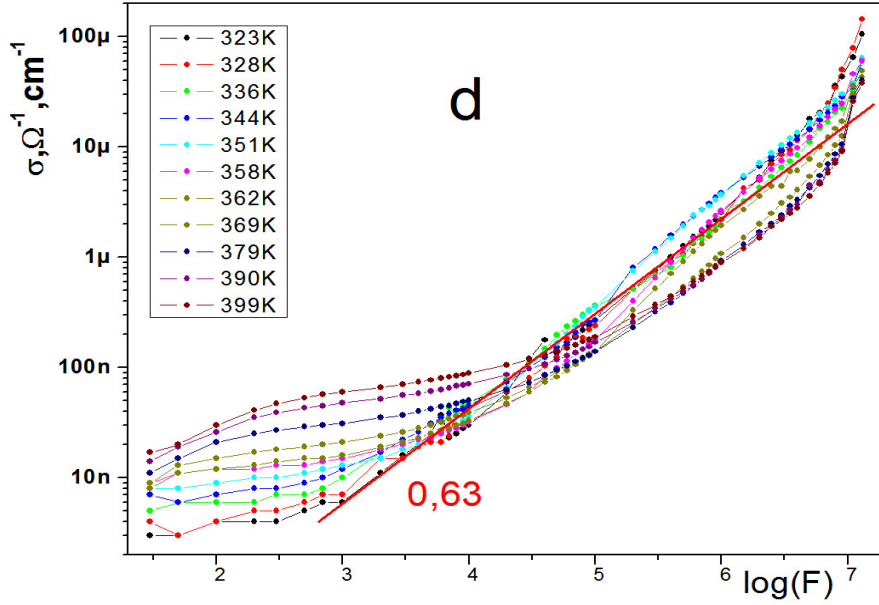
Şekil 4.4 TIInS₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.

Sabit sıcaklıklardaki TIInS₂ kristalinde katlara dik yöndeki iletkenlik spektrumları Şekil 4.5 gösterilmiştir. Şekil 4.5 (a) da 92K-155 K aralığında iletkenliğin frekansla değişiminde görülen tüm grafiklerin üst üste oturması şeklindeki davranış, yukarıda bahsedilen bu sıcaklık aralığında iletkenliğin sıcaklıktan bağımsız davranış sergilemesinin başka bir pencereden görünüşüdür.

Şekil 4.5 (b) ise yukarıda bahsedilen 205K-247K bölgesindeki orta frekanslarda iletkenliğin davranışı farklı bir çerçeveden görülmektedir. Burada dikkat edilmesi gereken önemli husus aslında tüm iletkenlik grafiklerinin tek bir veriden elde edildiğidir. Sadece farklı özellikler farklı grafiksel yöntemlerle daha ön plana çıkarıldığı unutulmamalıdır. Şekil 4.4 deki iletkenliğin sıcaklığa bağlı grafiklerinde görülen karmaşık davranışı ile Şekil 4.5 deki iletkenliğin frekansa bağlı grafiklerindeki düzenli görünüm karşılaştırıldığında, bu farklı grafiksel yöntemlerin aslında olayları basitleştirme ve anlama bakımından ne derece önemli olduğunun somut bir örneğidir.

Şekil 4.5 de tüm sıcaklıklarda iki ayrı frekans bölgesinde farklı iki eğim bölgesi gözlenmektedir. Bu eğimlerin sıcaklık fonksiyonu Şekil 4.6 da görülmektedir.





Şekil 4.5 TIInS₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(\omega)$ grafikleri.

Özellikle düşük sıcaklıklarda her iki bölgeden de elde edilen eğim değeri 1 e çok yakın olduğu, Şekil 4.5(c) deki sıcaklık bölgesinde ise bu iki bölgenin birbirine çok yaklaştığı ve giderek tek bir eğim halini aldığı görülmektedir.

Yüksek sıcaklıklarda da bu iki bölgenin birleşmesi sonucunda eğimde bir artışla beraber, düşük frekanslarda frekans penceresine üçüncü bir eğim dâhil olmaktadır. Bu birleşimde Şekil 4.6 da 300K civarında iki eğimin birbirine yaklaştığı ve 350 K den sonra düşük frekanslardaki eğimin ortaya çıkmasıyla bölgelerin birbirinden uzaklaştığı daha net görülmektedir. Bu noktadan hareketle iki bölgenin birleşmesinin, aslında daha düşük frekanslı bölgenin yüksek frekanslı bölgeyi içine alması durumuna karşılık geldiği söylenebilir.

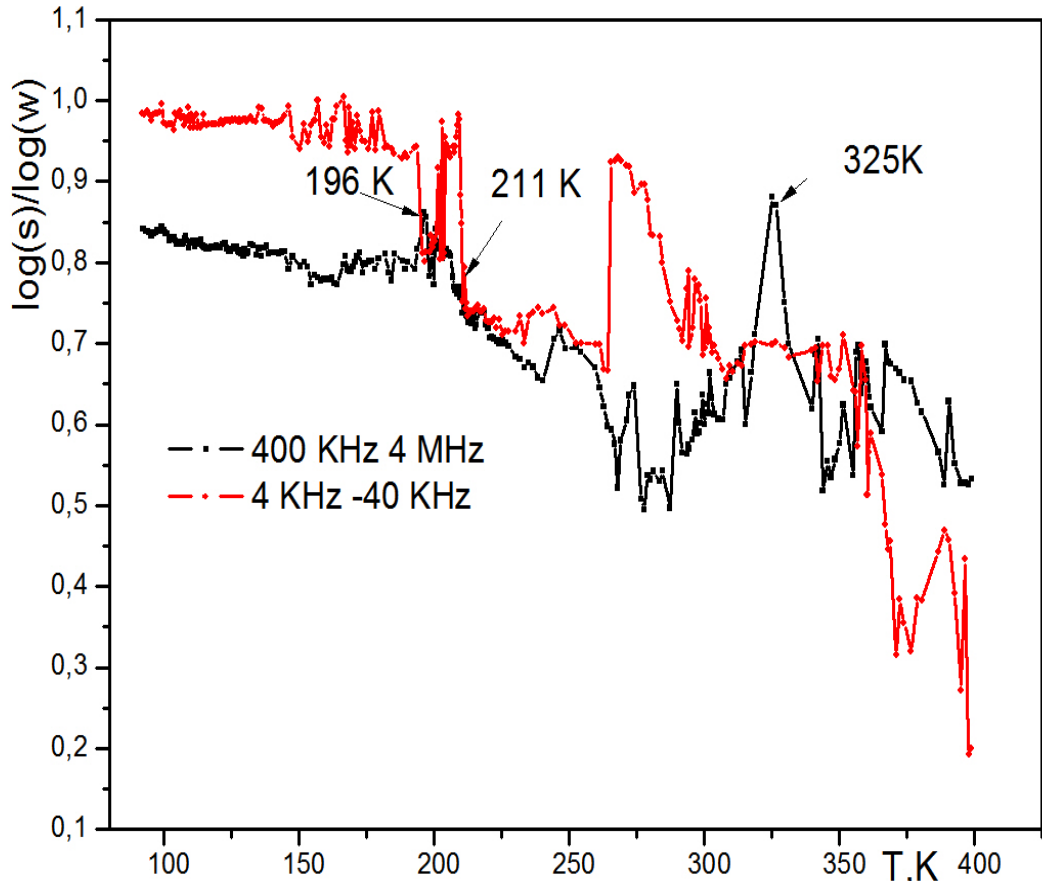
Yukarıda belirtilen eğimler Jonscher in evrensel ölçeklenme (scaling) formülü ile ilişkilidir.

$$\sigma'(\omega) = \sigma_0 \omega^s \quad (4.2)$$

Bu bağıntı ait davranış yüksek frekans bölgesinde yeterince açık şekilde görülebil-

mektedir. Düşük frekanslı bölgede düz doğrudan sapma D.C akım iletkenliği, muhtemel saçılma süreçlerinden veya ısıl genişleme sonucu yük taşıyıcıların serbest yürüyüş yolunun katmanlara dik yönde etkilenmesine bağlıdır [Abdullayev et al, 2004].

Şekil 4.5 (c,d)' de düşük frekanslı bölgelerde yukarıda bahsedilen nedenlerle sapmalar görülmektedir. Yüksek frekanslı bölgelerde iyi bir yaklaşıklıkla noktalar doğrusal bir yörüngeye oturmaktadır. Jonscher iletkenlik formülüne göre $TlInS_2$ kristalinde katmanlara dik yönünde s sabitinin sıcaklık fonksiyonu farklı frekans bölgelerinde Şekil 4.6 de görülmektedir. s sabitinin düşük sıcaklıklardaki davranışı çok dalgalı olarak ortaya çıkmaktadır. Bunun iki önemli nedeni olabilir: Birincisi, katlar arası kristal kusurlarının konsantrasyonunun büyük olması ikincisi, ise ısıl genişlemenin katmanlara dik yönde dalgalanmasıdır.



Şekil 4.6 $TlInS_2$ kristalinde katmanlara dik yöndeki s parametresinin sıcaklıkla değişim grafiği.

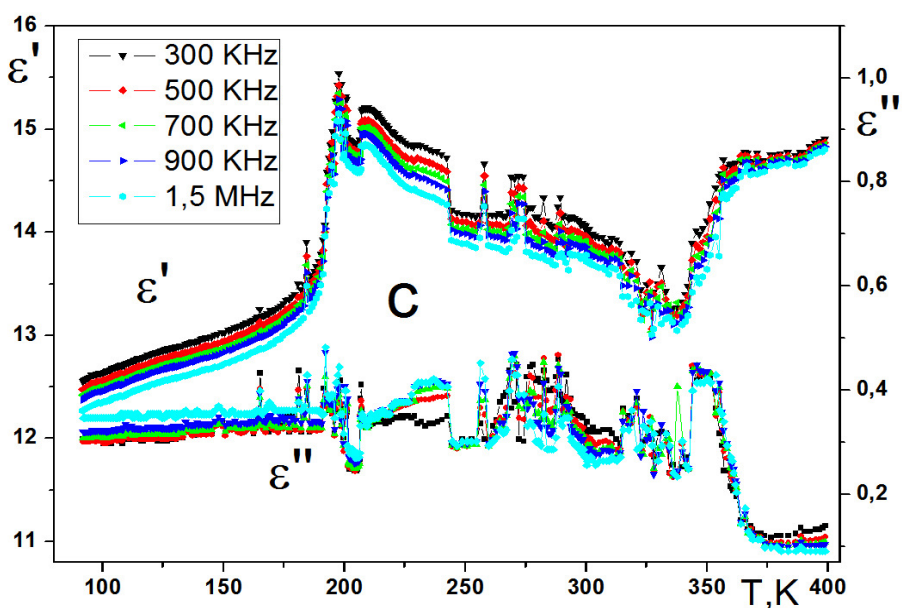
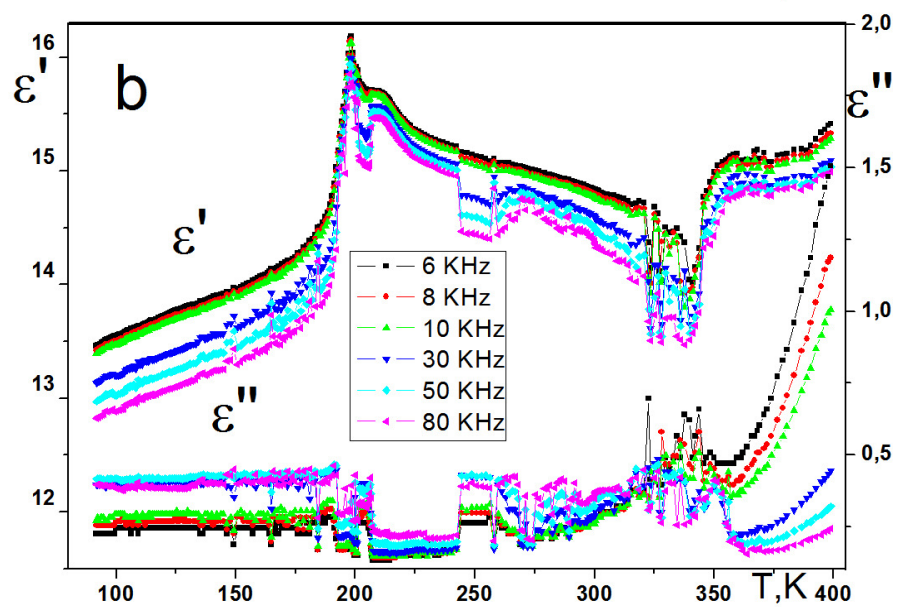
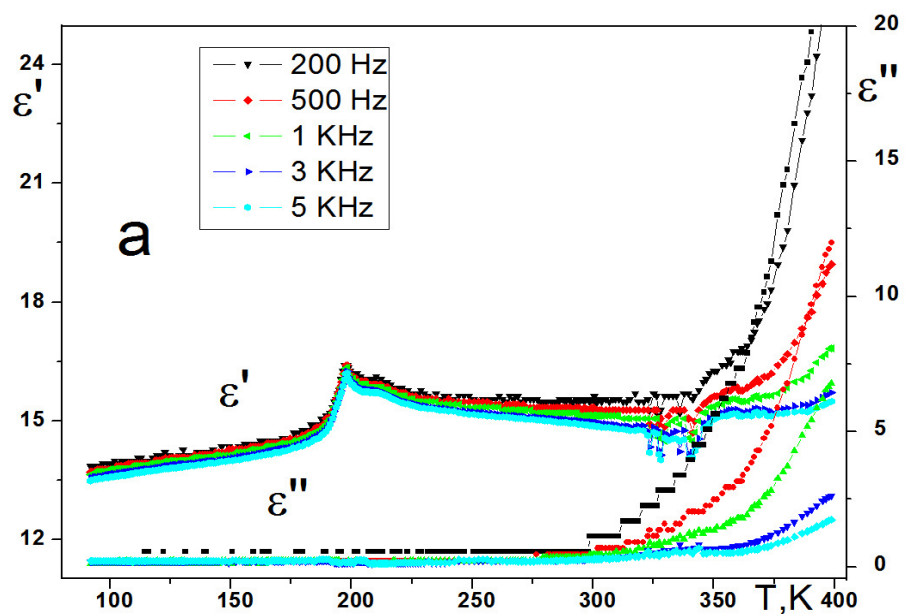
Genelde yarı iletkenler ve yalıtkanlarda ölçeklendirme parametresinin sıcaklıkla azaldığı literatürden bilinmektedir [Jonscher,1983]. Şekil 4.6' de s değerinin yüksek frekanslı birinci bölgede 0,85-0,5 düşük frekanslı ikinci bölgede 1-0,4 aralığında değiştiğini görüyoruz. Buna göre bu davranışın Jonscher'ın evrensel ölçeklendirme kanununa uyduğu söyleyebiliriz.

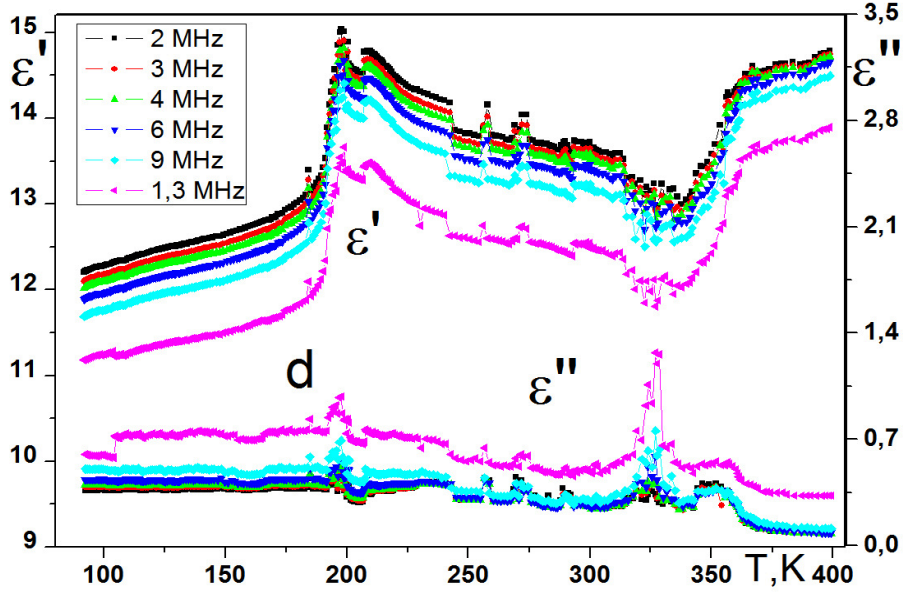
Burada iletkenliği katmanlara dik olarak incelenmekte ve ölçülen frekans bölgemizde dipollere ait davranışları ortaya koyacak frekanslardan oldukça düşük frekanslardadır. Ayrıca bu kristallerin yarı iletken olduğu ve dolayısıyla iletkenlik mekanizmasında serbest yüklerin önemli rol oynadığı ve 315K den düşük sıcaklık bölgesinde iletkenliğin frekansla olan davranışının Jonscher evrensel ölçeklenme bağıntısına uygun davranışı sergilemesi göz önüne alındığında, TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yönünde iletkenliğin 315K den düşük sıcaklıklarda yarıiletkenlere özgü olan atlama mekanizmasıyla gerçekleştiğini sonucuna varılmaktadır. Özet olarak katmanlara dik yönde TlInS₂ kristalinde iletkenlik mekanizması, 315K dan yüksek sıcaklıklarda klasik aktivasyon mekanizması iken bu sıcaklıktan düşük sıcaklıklarda yük taşıyıcılarının katlar arası atlaması ile gerçekleşmektedir.

4.1.1.2 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu

Şekil 4.7 de katmanlara dik yöndeki ϵ' ve ϵ'' 'ın farklı frekanslardaki sıcaklık grafikleri görülmektedir. Tüm frekanslarda ϵ' ' da açıkça 197,5K daki faz geçişine ait pik ve 212K deki oransız faz geçişine ait bir omuz görülmektedir. ϵ' en yüksek değeri olan 26 y 200 Hz de ve 400K de alırken, en düşük değeri olan 11 değerini en yüksek frekansta ve en düşük sıcaklıkta almıştır. Bu grafiklerin ikinci önemli noktası ise 335K de bir minimum değere ulaşıp sonra hızla artmasıdır. Bu davranışın nedeni ise bu sıcaklıkta iletkenlikte bahsettiğimiz katkı-bant geçişleri meydana geldiğinin bir diğer göstergesidir.

Şekil 4.7 de ki katmanlara dik yöndeki ϵ'' ın farklı frekanslardaki sıcaklığa bağlı davranışında tüm frekanslarda 197,5K daki faz geçişine ve 212K deki oransız faz geçişine ait net bir anomali görülmemektedir. ϵ'' , 212-250K aralığında bir



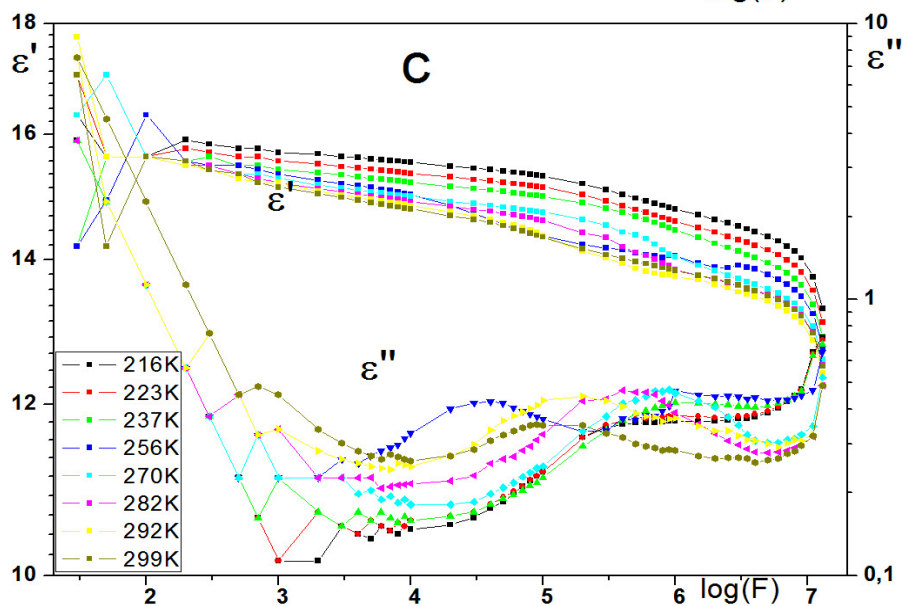
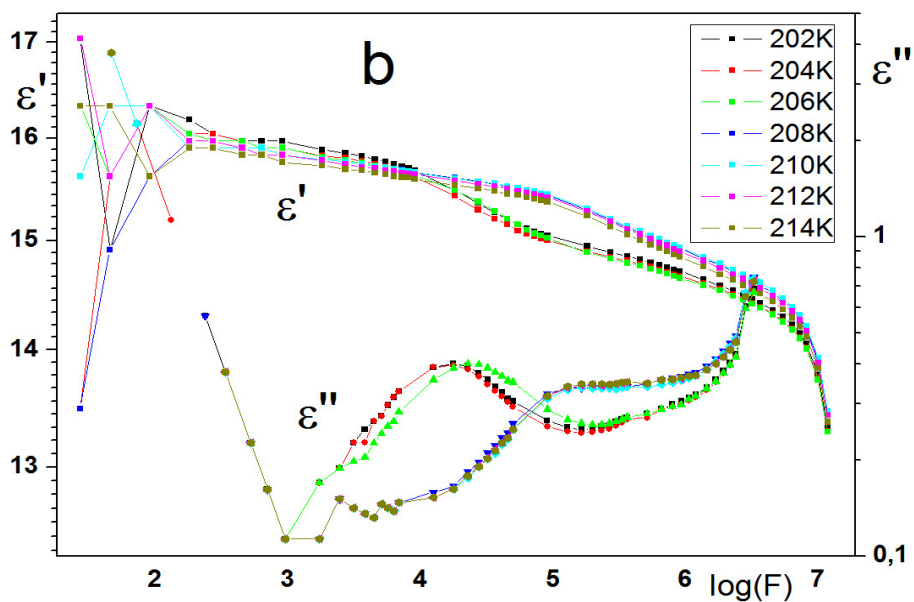
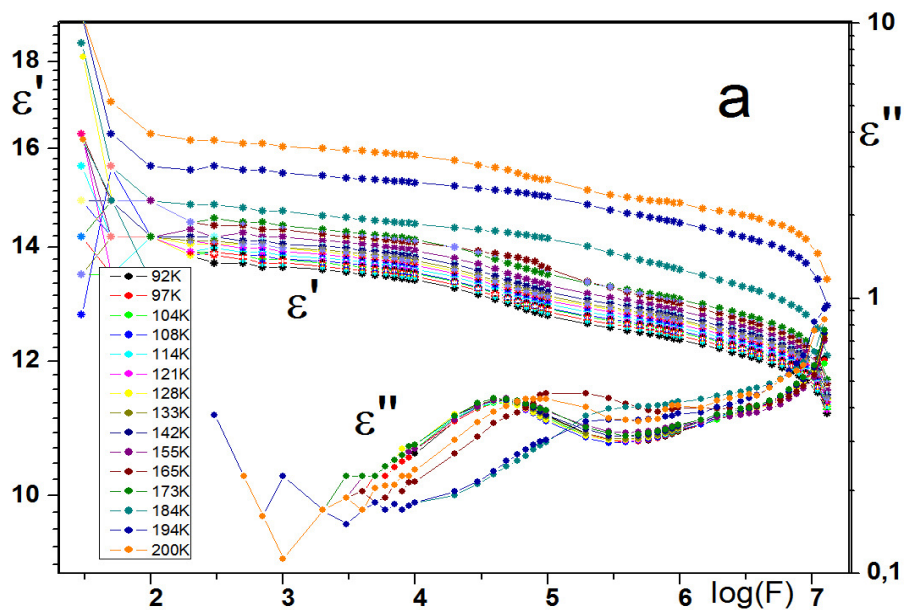


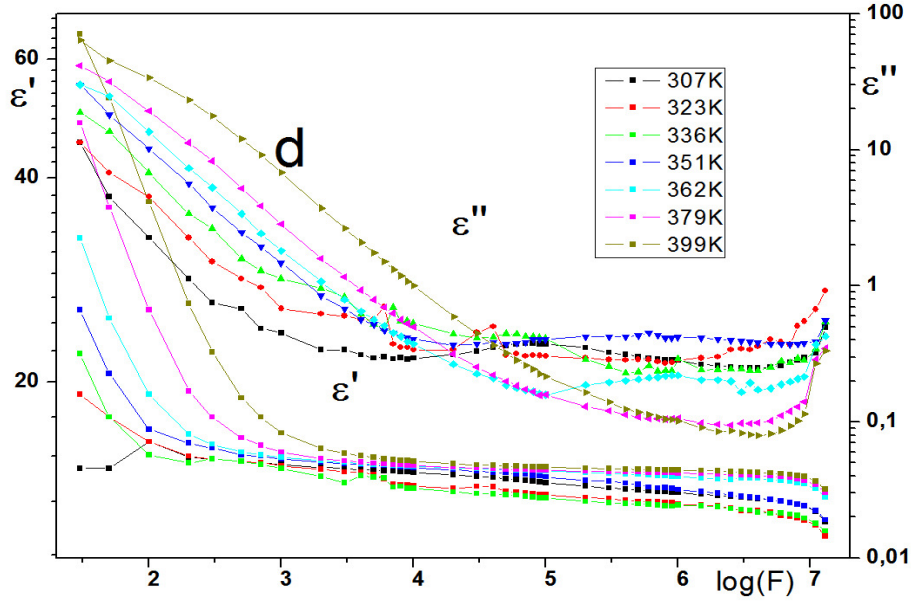
Şekil 4.7 TlInS₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(T)$ ve $\epsilon''(T)$ grafikleri.

minimum değere sahipken 315K den önceki tüm sıcaklık aralığında sıcaklıktan bağımsız olduğunu söylenebilir.

Zira bu sıcaklıktan önceki değişimler çok küçüktür. Bu grafiklerin bir diğer önemli noktası ise 335K de ϵ' 'in minimum olduğu sıcaklıkta ϵ'' ' mın ani değişimlere uğramasıdır. Ayrıca çok önemli olan bir nokta ise ϵ'' değerlerinin küçük olmasıdır. Bunun sebebi ise iletkenliğin çok düşük olmasından kaynaklanmaktadır. Bu durumun yansımaları Cole-Cole diyagramlarının bir maksimumdan geçmesi olarak görmekteyiz. Burada yüklerin tamamen serbest yükler olmadığını, katlar arasındaki bazı bölgelerde biriktiğini, bu yüzden iletkenliğin düşük, ancak ϵ' 'in büyük olduğunu söyleyebiliriz. Yine ayrıca düşük frekanslarda yüksek sıcaklıklarda ϵ'' 'de ani bir artış görülmektedir. Burada da yine yüksek sıcaklıklarda katkı-bant geçişinin yansımaları görülmektedir.

Şekil 4.8 de katmanlara dik yöndeki ϵ' ve ϵ'' 'in farklı sıcaklıklardaki frekansa bağımlılık grafikleri görülmektedir. 315 K ne kadar tüm sıcaklıklarda ϵ' 'da frekansa bir lineer bağımlılık görünürken 315K de Şekil 4.8d de görüldüğü gibi bir üstel





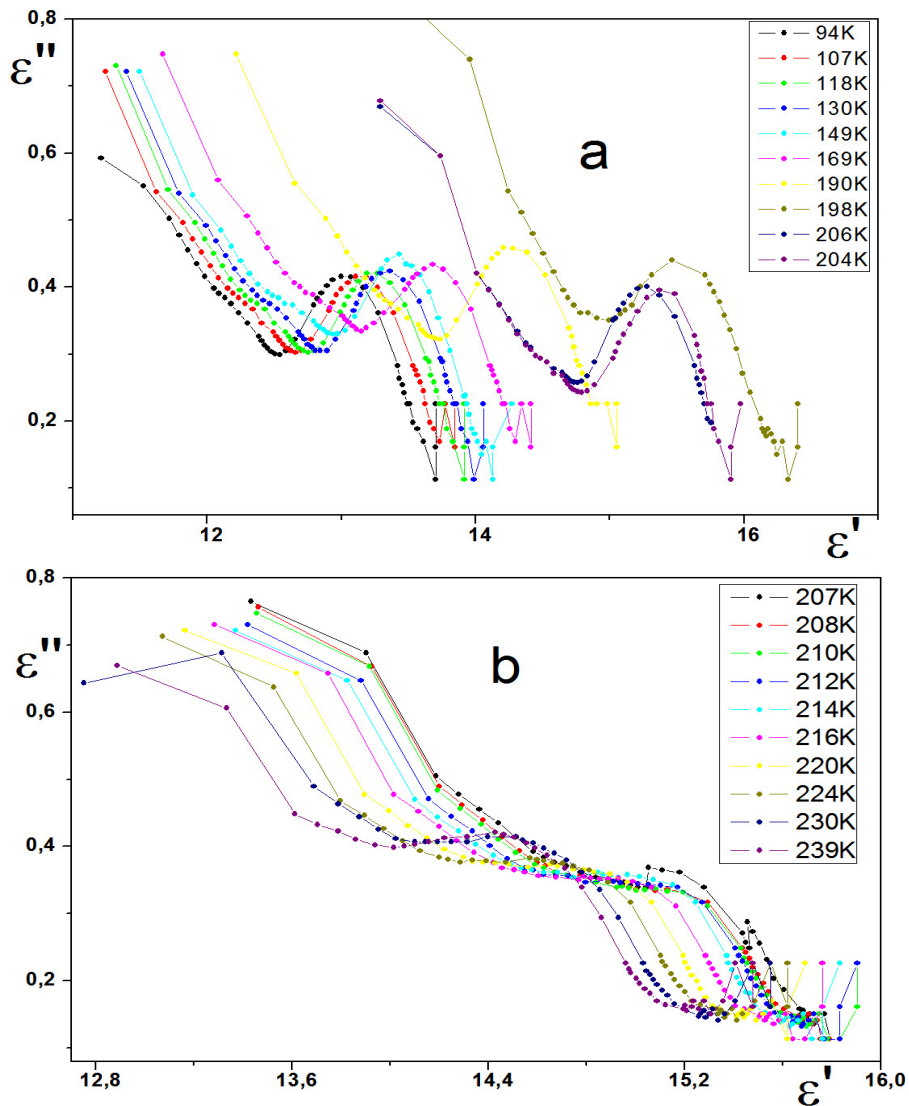
Şekil 4.8 TIInS₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(w)$ ve $\epsilon''(w)$ grafikleri

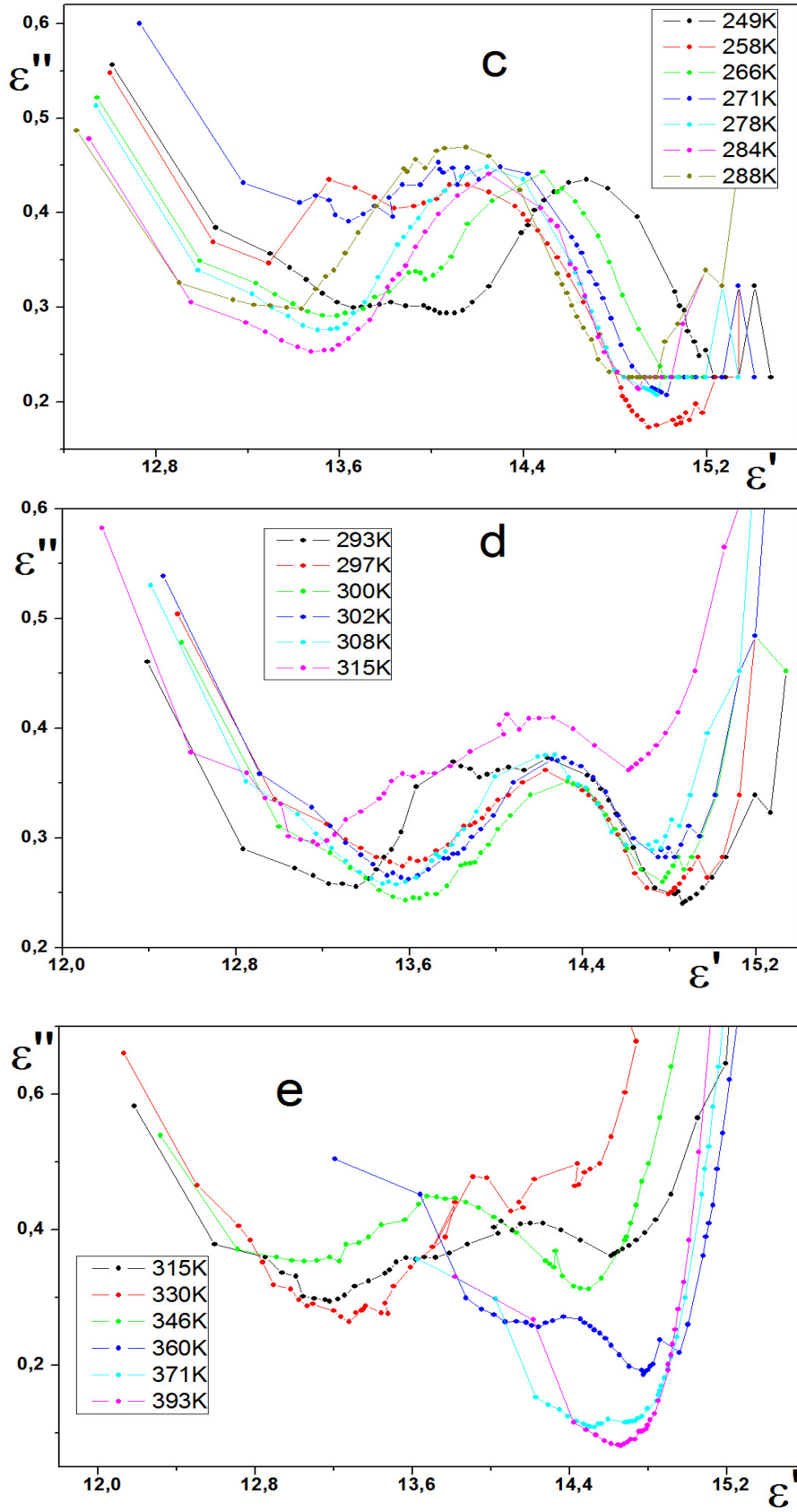
bağımlılık söz konusudur. Bu davranışın nedeni ise yine bu sıcaklıktaki iletkenlik mekanizmasının değişmesidir. Ayrıca 10KHz-100KHz frekans aralığında 315K ya kadar olan tüm sıcaklık bölgelerinde ϵ' 'da hafif bir dispersiyon görülmekte, aynı bölgede ϵ'' ise belirgin bir maksimumdan geçmektedir. Bunun da sebebi bu frekans aralığında kristale ait bu yöndeki öz titreşim frekanslarına ulaşılmış olmasıdır.

ϵ' ve ϵ'' in, serbest yüklere ait klasik davranışına benzer bir davranışı yine yüksek sıcaklıklarda sergilediğini görmekteyiz. Bu davranış ϵ' de üstel azalan bir fonksiyon şeklindeyken, ϵ'' 'da, $1/\omega$ ya uygun şekilde logaritmik ölçekli skalada, eğimi -1 olan bir lineer azalma şeklindedir. Bu sıcaklık bölgesinde ϵ'' in bir maksimumdan geçmemesi artık iletkenliğin atlama mekanizmasından farklı bir mekanizmayla gerçekleşmesinin bir sonucudur. Böylece dielektrik fonksiyonlarının hem sıcaklıkla hem frekansla olan davranışlarından da, katmanlara dik yönde TIInS₂ kristalinde 315K dan yüksek sıcaklıklarda iletkenlik mekanizmasının klasik aktivasyon mekanizması iken bu sıcaklıktan düşük sıcaklıklarda yük taşıyıcıların katlar arası atlama süreçleri ile gerçekleştiği anlaşılmaktadır.

4.1.1.3 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Cole –Cole Diyagramı

Şekil 4.9 da TlInS₂ kristalinin katmanlara dik yöndeki farklı sıcaklıklardaki Cole-Cole diyagramları görülmektedir. Bu diyagramlarda ilk göze çarpan özellik 315K den önceki sıcaklıklarda belirgin bir maksimumdan geçmesidir. Ancak burada bir yarım çembere şeklini alması söz konusu değildir zira eksenlerin değerlerine bakıldığında y ekseninin çok küçük değerlere sahip olduğu görülür. Cole-Cole diyagramlarında çember oluşabilmesi için x ve y eksenlerinin değerlerinin bir birine yakın olması gerekmektedir. Buradan yük taşıyıcıların bir bölgede uzunca süre birikip yavaşça boşaldığı sonucu ortaya çıkmaktadır. Böylece iletkenlik dolayısıyla da ϵ'' düşük değerlere sahipken, ϵ' 'da yüksek değere sahip olmaktadır.





Şekil 4.9 TIInS₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki Cole-Cole diyagramları.

Bu yarı çemberlerin maksimum noktalarına karşılık gelen frekans değerleri Matlab programı ile yazılan bir program yardımıyla maksimumlara karşılık gelen frekans değerleri bulunmuştur. Elde edilen frekans değerlerinden

$$\tau = \frac{1}{\omega} \quad (4.3)$$

eşitliği yardımıyla durulma zamanları elde edilmiştir. Hesaplanan durulma zamanlarının sıcaklığa bağlı davranışı Şekil 4.11 de gösterilmiştir.

Şekil 4.11a görülen durulma zamanlarının gerçekte TlInS₂ kristalinin katmanlara dik yönde düzensiz bir yapıya sahip olduğunu göstermektedir. Yapılan titiz hesaplamalar sonucunda elde edilen durulma zamanlarının herhangi bir fonksiyona uymadığı görülmektedir. Şekilde Cole-Cole diyagramlarından durulma zamanları sadece 315K ya kadar elde edilebilmiştir. Bunun sebebi yukarıda iletkenlikten bahsedilirken 315K dan önceki iletkenlik mekanizmasının atlama mekanizması olduğu, bu sıcaklıktan sonraki mekanizmanın ise katkı-bant geçişi olduğu söylenmişti. Burada da bunun yansıması görülmektedir.

Yüksek sıcaklıklarda ikinci yarım daire ortaya çıkmakta ve kayıp faktörü olan ϵ'' yaklaşık 100 kat artarak diğer mekanizmaya ait maksimumu bastırıp durulma zamanının bu sıcaklıktan sonra belirlenmesini imkânsız hale getirmektedir. Bu sıcaklıktan sonraki iletkenlik mekanizmana ait durulma zamanını belirlemek için gerekli maksimum noktası da Şekil 4.9e den de anlaşılacağı gibi oluşmamaktadır. Bu zamanı belirlemek için literatürde var olan farklı bir grafik yöntemini kullanıldı. Burada tekrar bütün bu grafiklerin sadece iletkenlik ve kapasite ölçümlerinden elde edildiğini, diğer tüm grafiklerin hesaplamalardan başka bir şey olmadığını hatırlatmakta fayda görüyorum. Ancak bir grafikte ortaya çıkmayan detaylar farklı hesaplamalarla belirlenebilmektedir. Esasen diğer hiçbir ölçümde Cole-Cole diyagramında bir maksimuma rastlanmamıştır. Burada ortaya çıkmasının sebebi dielektrik sabitinin çok düşük olması ve frekans aralığımızın burada gerçekleşen

sürecin öz frekansıyla örtüşmesinden kaynaklanmaktadır. Hatta burada bile yüksek sıcaklıklarda sanal dielektrik geçirgenlik artınca bu maksimum belirlenememektedir.

4.1.1.4 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Elektrik Modülünün Argand Diyagramları

Kullanılan dielektrik spektroskopi yöntemi diyagram tekniği ile bu durulma zamanlarını, frekans çevrimindeki frekans sıklığına bağlı olarak, belirlememize olanak sağlamaktadır. Ancak kullanılan frekans aralığı dipol-dipol durulma zamanlarını belirlemek için yerli değildir. Bunun için genelde 10GHz frekans civarında bir tarama yapmak gerekmektedir.

Serbest yüklerin iletkenlik süreçleri ile bağlı olan durulma zamanlarını, elektriksel modülü diyagram tekniği ile yapılan araştırmanın sonuçları Şekil 4.10' da elektriksel modülünün argand diyagramı gösterilmiştir. Bu diyagram formalizmi

$$M^* = 1/\epsilon^* \quad (4.4)$$

formülünden yola çıkılarak elde edilmiştir. Yani elektrik modülü kompleks şekli, kompleks dielektrik geçirgenliğin tersidir [Havriliak, 1997] ,[Angle,1990].

Kompleks modülü

$$M^* = M' + M'' \quad (4.5)$$

$$M = \frac{\epsilon'}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} + \frac{\epsilon''}{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2} \quad (4.6)$$

şeklinde ifade edilir. Diğer taraftan dielektrik geçirgenliğin ve elektrik modülü ters orantılı olduğundan dolayı

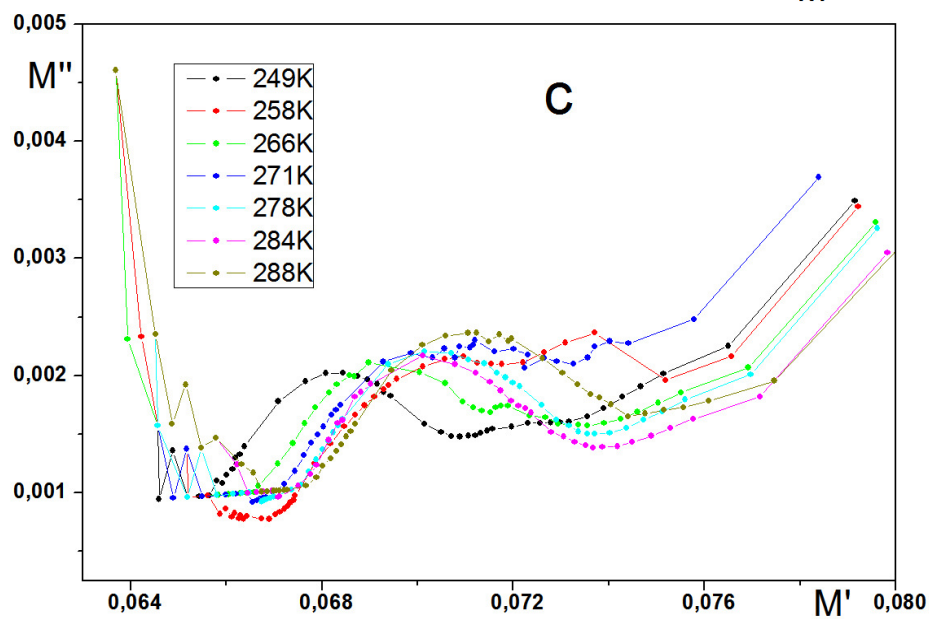
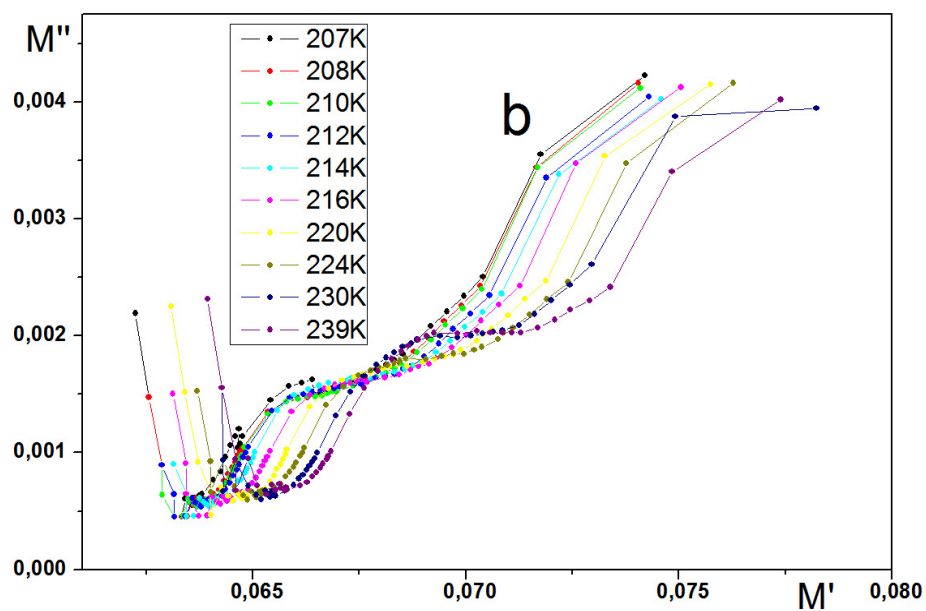
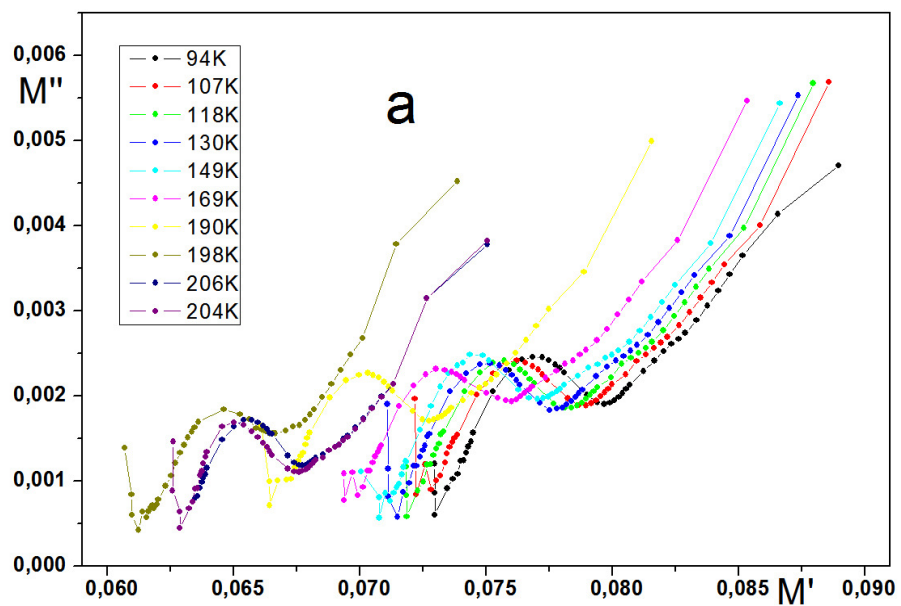
$$\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} = \frac{M_\infty}{M_0} \quad (4.7)$$

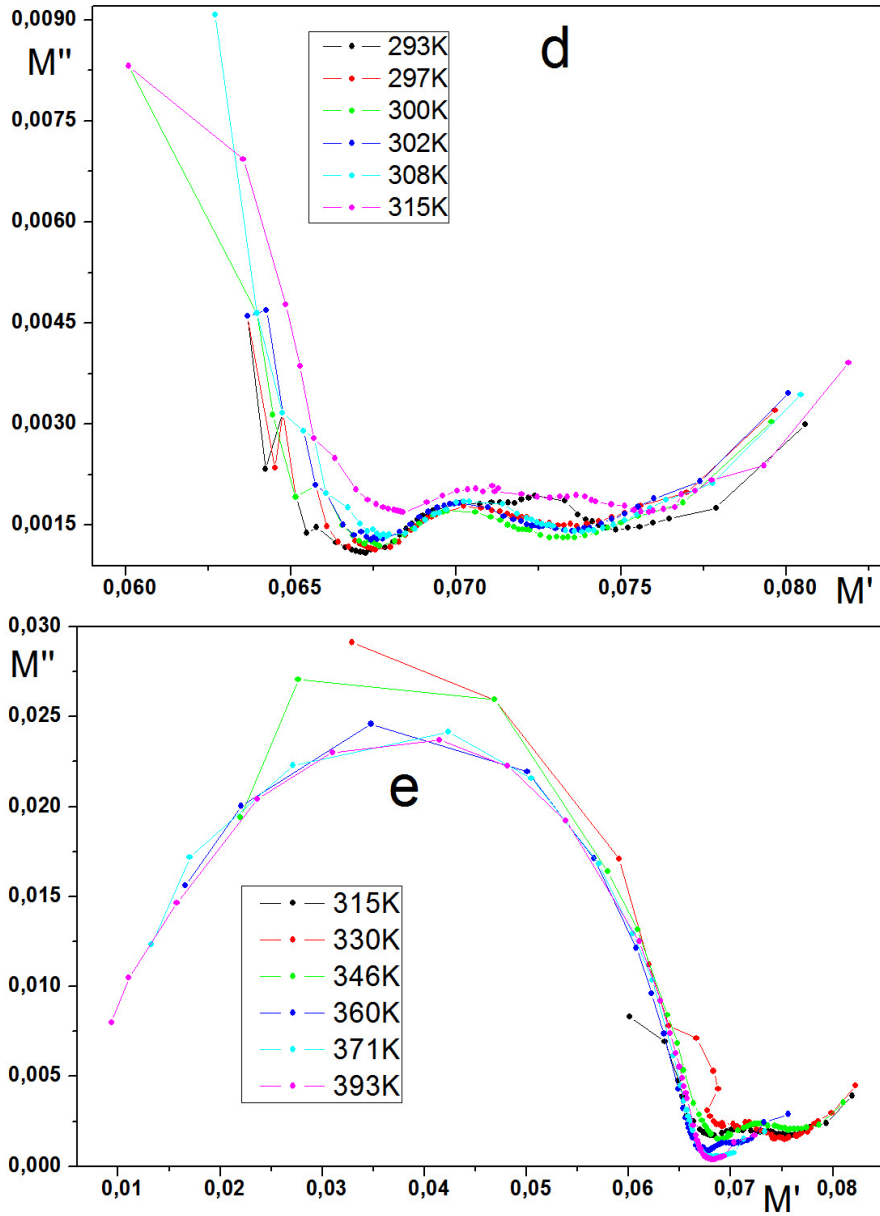
Burada ϵ_0 ve M_0 alçak frekanslı , ϵ_∞ ve M_∞ yüksek frekanslı dielektrik geçirgenlik ve elektrik modülüdür. [Moynihan,1971], [Macedo, 1972], ve [Howell, 1974] yayınlarında geliştirilen teoriye göre doğru akım iletkenliği, Elektrik modülü ve Maxwell durulma zamanı arasındaki bağıntı;

$$(\sigma_{dc})^{-1} = \frac{M_\infty \langle \tau_{DC} \rangle}{\epsilon_0} \quad (4.8)$$

Şeklinde dir. Burada σ_{dc} doğru akım iletkenliğidir , τ_{dc} doğru akım sürecinde yer alan yük taşıyıcının durulma zamanının istatistiksel ortalamasıdır. Kompleks düzleminde gerçel ve sanal elektriksel modülün argand diyagramlarını ortaya çıkarmaktadır. [Havriliak,1997]

Şekil4.10 de TIInS₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki farklı sıcaklıklardaki elektrik modülünün argand diyagramları görülmektedir. Bu diyagramlarda ilk göze çarpan özellik 315K den sonraki yüksek sıcaklıklarda dâhil olmak üzere tüm sıcaklık bölgesinde belirgin bir maksimumdan geçmesidir. Bu maksimum noktalarına karşılık gelen frekans değerleri yine Matlab programı yardımıyla elde edilmiş ve bu elde edilen durulma zamanları Şekil 4.11 de gösterilmiştir. Şekil 4.11a da görülen durulma zamanları, gerçektende TIInS₂ kristalinin katmanlara dik yönde bir düzensiz (disorder) bir yapıya sahip olduğunu farklı bir hesaplama yöntemiyle bir kez daha göstermektedir. Ancak bu hesaplamanın yapılmasının esas sebebi Cole-Cole diyagramlarında elde edilemeyen yüksek sıcaklık bölgesine ait durulma zamanının elde edilebilmesidir. Bu zamana ait grafik Şekil 4.11b de görülmektedir. Burada dikkati çeken bir diğer nokta düşük sıcaklıklarda elektrik modülünün argand diyagramının davranışı Cole-Cole' nin davranışıyla hemen hemen aynı olmasıdır. Ancak yüksek sıcaklıklarda bu davranışlar tamamen değişmektedir. Serbest yüklerin davranışını ortaya koyan elektrik modülünün argand diyagramının tüm sıcaklık bölgesinde maksimumdan geçmesi tüm sıcaklıklarda meydana gelen iletkenliğin serbest yüklere bağlı olduğunun kanıtıdır. Zaten Şekil 2.4 incelendiğinde, incelenen frekans aralığındaki kutuplanma mekanizmasının Maxwell-Wagner tipi bir kutuplanma olduğu ve bu kutuplanmanın da serbest yüklere ait bir davranış olduğu görülmektedir.





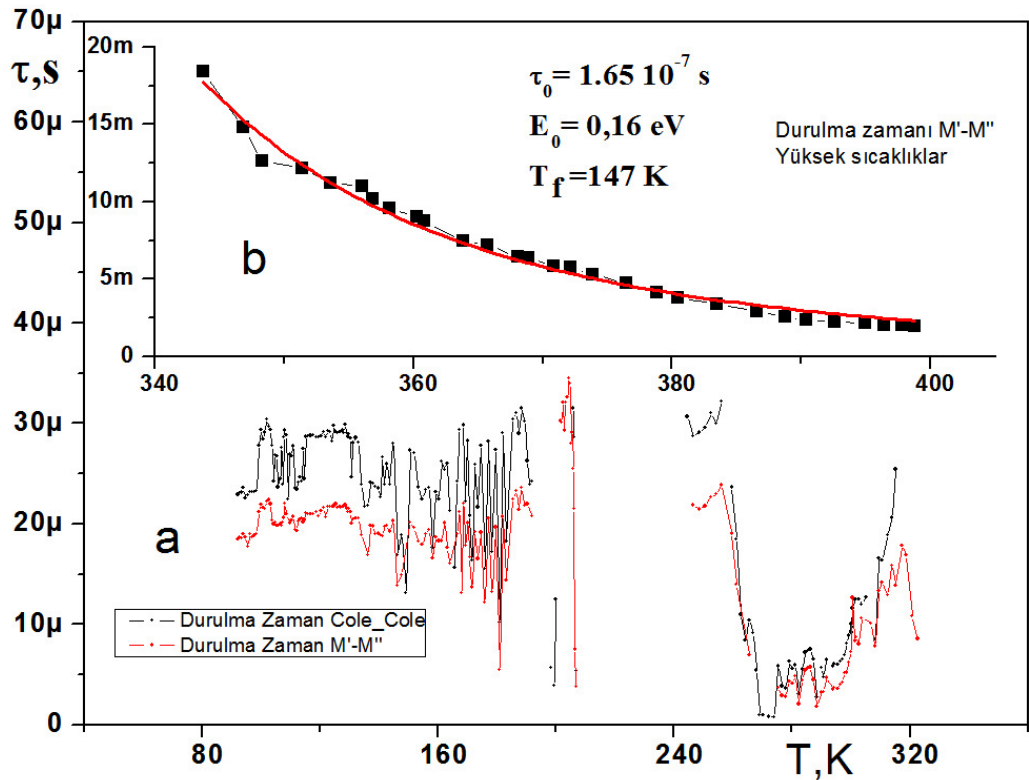
Şekil 4.10 TIInS₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki elektrik modülünün Argand diyagramları.

Düşük sıcaklıklarda görülen hem Cole-Cole diyagramlarındaki hem de elektrik modülünün argand diyagramının maksimumdan geçme durumunun bu sıcaklıkta gerçekleşen kutuplanmanın dipol le benzer ancak serbest yüklerle gerçekleşen bir kutuplanma olduğunu göstermektedir. Bu da ancak serbest yüklerin bir yerde biriktiğini ve sanki dipol gibi davrandığını ortaya koyan bir davranıştır. Zaten Cole-Cole diyagramlarının çember şeklinden uzak oluşu bunun gerçek bir dipol davranış olmadığını göstermektedir. 315 K dan yüksek sıcaklıklarda sadece elektrik modülünün

argand diyagramlarının maksimumdan geçmesi buradaki serbest yüklerin kristal içindeki kusurlarda birikmesinin yok denecek kadar az olduğu anlamına gelmektedir.

4.1.1.5 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Durulma Zamanı

Şekil 4.11 de TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki elektrik modülünün argand diyagramlarından ve Cole-Cole diyagramlarının maksimumlarından elde edilen durulma zamanlarının sıcaklıkla davranışı görülmektedir. Burada ilginç olan nokta 315 K den sonraki durulma sürecine ait zamanların bu sıcaklıktan önceki zamanlardan 1000 kat daha yavaş bir süreç olması ve diğer sürece ait etkileri bastırmasıdır. Bir diğer nokta ise hızlı süreçler için elde edilen durulma zamanlarının herhangi bir matematiksel forma uymamasıdır.



Şekil 4.11 TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki Elektrik modülünün argand diyagramları ve Cole-Cole diyagramlarının maksimumlarından elde edilen durulma zamanlarının sıcaklıkla davranışı.

Bununla birlikte yüksek sıcaklıklara ait durulma zamanlarının denklem 4.15 deki Vogel-Fulcher formülüne uygun davranışı tespit edilmiştir. Burada E_0 değeri Şekil 4.3 deki $TlInS_2$ kristalinin düşük frekans aralığında katmanlara dik yöndeki iletkenliğin sıcaklık bağımlılığı dan elde edilen aktivasyon enerjisi civarında seçilmiştir. Buna karşılık elde edilen T_f değeri ise bu kristallere camsı geçiş sıcaklığı olarak adlandırılan sıcaklığı ifade etmektedir. Camsı geçiş sıcaklığı genelde amorf malzemelerde görülen bir özelliktir. Böyle bir sıcaklığın bu kristallerde görülmesi kristalin oldukça disorder bir yapıda olduğunun bir göstergesidir.

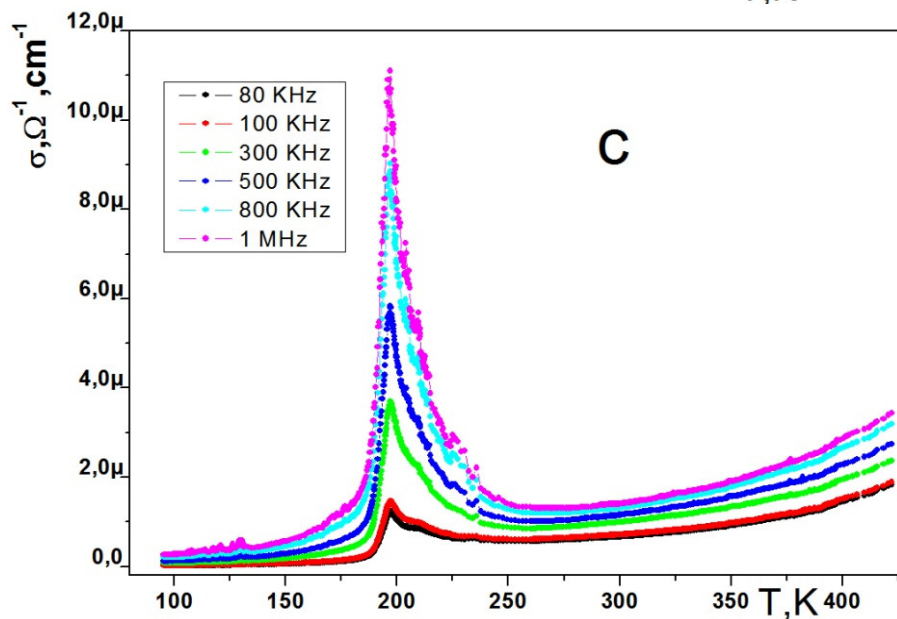
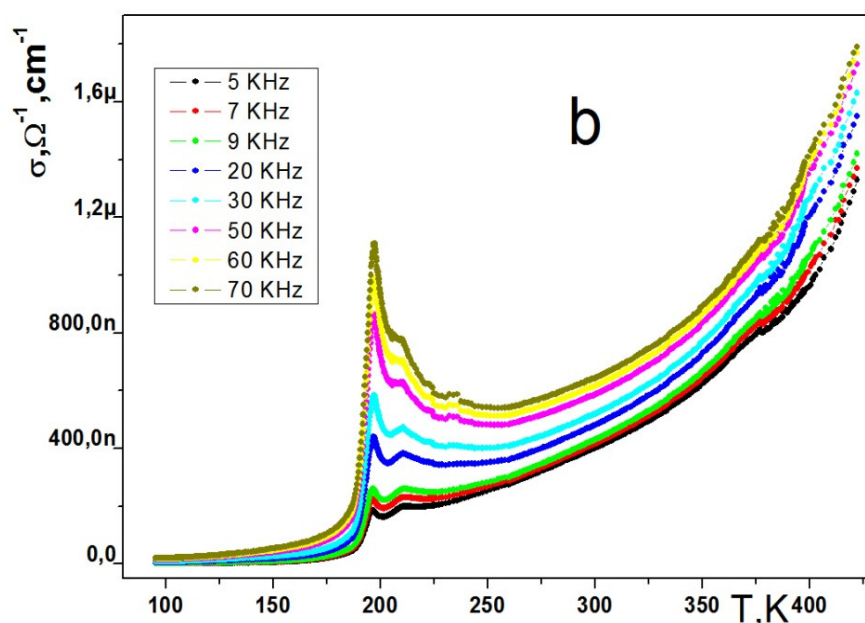
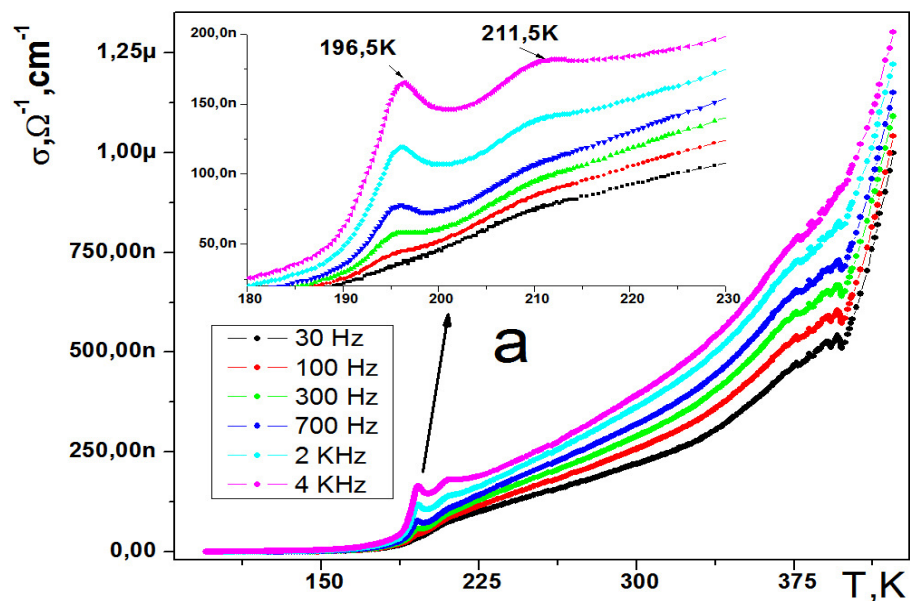
Burada T_f değeri tam doğru bir sıcaklıktır denemez çünkü birincisi sıcaklık aralığı oldukça dar buda aynı fonksiyona farklı E_0 değerleri seçerek kabul edilebilir küçük sapmalarla çok farklı T_f değerleri elde etmek mümkün olduğu anlamına gelmektedir. Burada önemli olan camsı geçiş sıcaklığının tespit edilmesidir. Literatürde düşük sıcaklıklarda içeriği tam olarak açıklanamamış davranışların varlığı çeşitli araştırmalarda ortaya konmuştur. Buradaki T_f değerinin varlığı bu durumun muhtemel bir yansımasıdır.

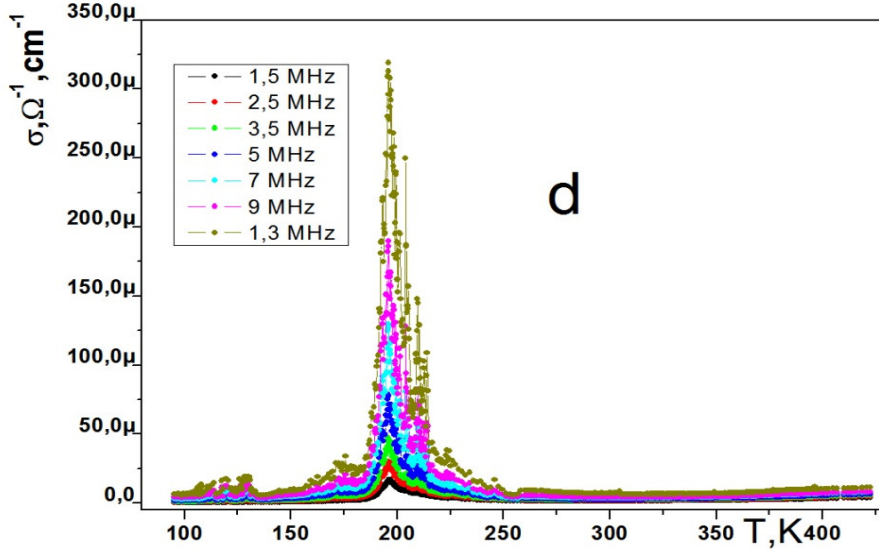
4.1.2 $TlInS_2$ Kristalinin Katmanlara Paralel Yönde Dielektrik spektroskopi Yöntemiyle İncelenmesi

4.1.2.1 $TlInS_2$ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki A.C İletkenliği

$TlInS_2$ kristalinde kendiliğinden kutuplanmanın katmanlara paralel yönde meydana geldiği giriş bölümünde ifade edilmişti. İncelenen kristalde ferroelektrik faz geçişi 196.5K de, oransız faza geçiş ise 211,5K'de gözlenmektedir.

Katmanlara paralel olan yönde incelediğimiz A.C. iletkenlik spektrumları Şekil 4.12 de a, b, c, d olarak farklı frekans gruplarına ayrılarak verilmiştir. Bütün bu şekillerin ortak noktası 197.5 K da maksimumdan geçmesidir. Bu sıcaklıkta kristalin yapısı değişmekte, dolayısıyla iletkenliğin pikten geçmesi doğal bir davranıştır.





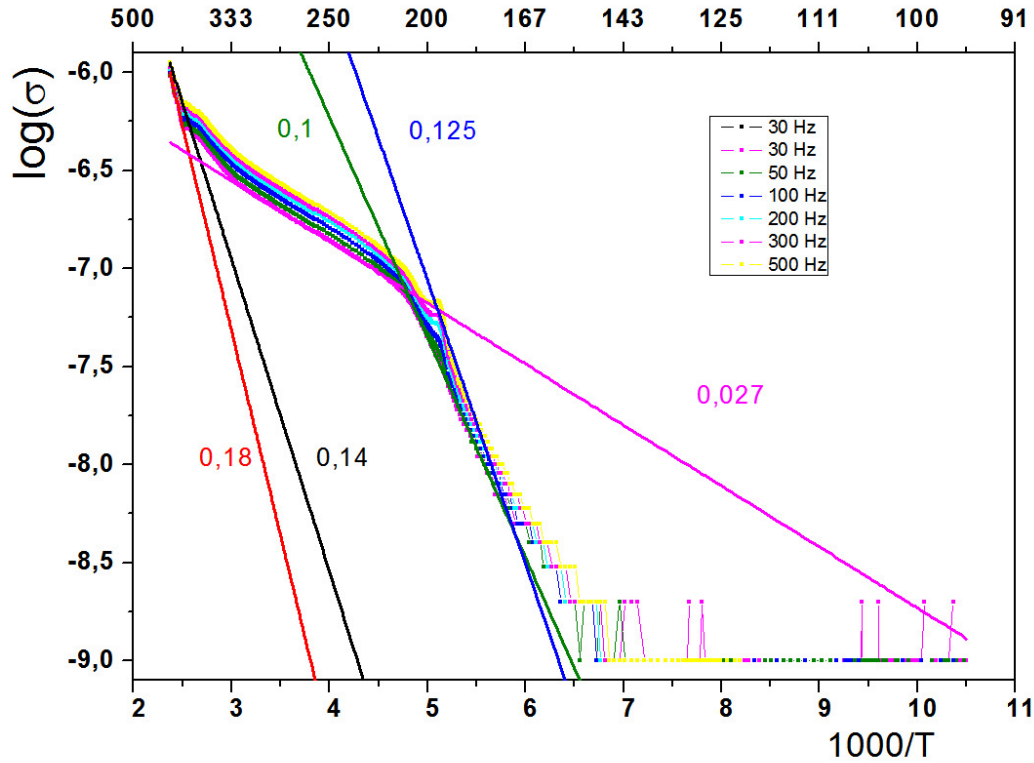
Şekil 4.12 TIInS₂ kristalinde farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.

$T_i=211,5K$ sıcaklığında iletkenlikte bir dispersiyon olayı ortaya çıkmaktadır. 30Hz-100KHz frekansları arasında oransız faz geçişinde bir anomali gözlenmektedir. Bunun sebebi bu frekans aralığında modüleri yapıya has olan öz frekansları kapsadığındandır.

İletkenliğin spektral davranış oransız faz geçişinde maksimumu ortaya koymaktadır. Frekans arttığında T_i faz geçişin de maksimum şekli bir omuzcuk şekline dönüşmektedir. Muhtemelen yüksek frekanslarda omuzcunun nedeni oransız faza has olan öz frekans değerinde uzaklaşmış olmasıdır. Düşük frekanslı iletkenlik kayıp olan yapı elemanlarından yük taşıyıcıların saçılmasından dolayı iletkenlikteki anomali gözlenmektedir.

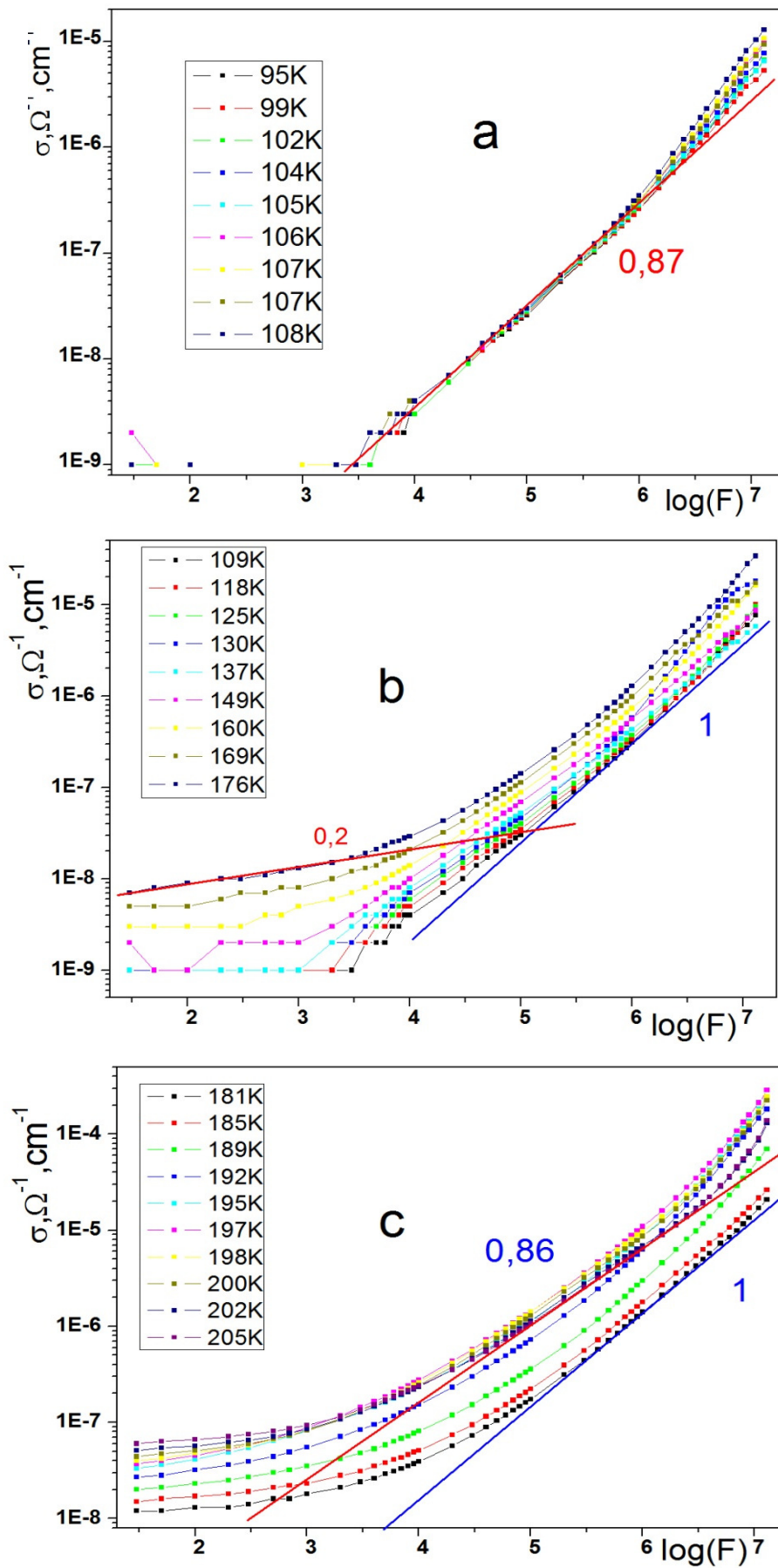
Burada bir diğer önemli nokta Şekil 4.12a da görülen yüksek sıcaklıklarda frekanstan bağımsız bir bölgenin giderek oluşmasıdır. Bu durumu daha açık şekilde ortaya koymak için Şekil 4.13' de TIInS₂ kristalinde katmanlara paralel yönde düşük frekanslı iletkenliğin sıcaklık bağımlılığı verilmiştir. Katmanlara dik yönde yapıldığı gibi kristal yeterince yüksek sıcaklıklara kadar ısıtılıp iletkenliği incelendiğinde Şekil 4.13 deki gibi frekanstan bağımsız bir bölge oluşmaktadır. Bu $1000/T$ grafiğini

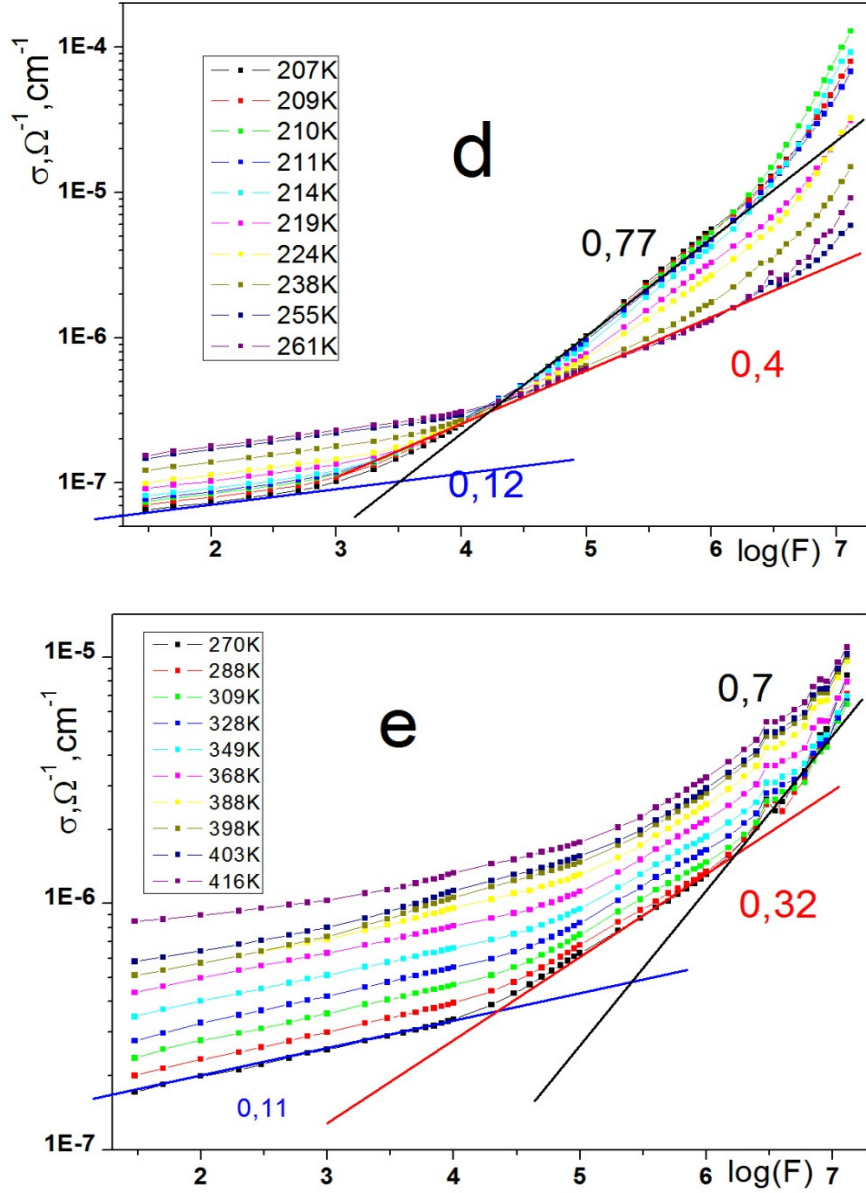
kullanarak TlInS_2 kristali için karakteristik iletkenlik mekanizmalarını sağlayan serbest yük geçişlerinin aktivasyon enerjileri hesap edilebilmektedir.



Şekil 4.13 TlInS_2 kristalinde düşük frekanslı katmanlara paralel yönde $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.

Bu grafikten üç eğim görülmektedir. 150-225K sıcaklık bölgesinde aktivasyon enerji 0,1-0,125 eV olarak ortaya çıkmıştır. Bu bölgede kristalin kendiliğinden kutuplamaya sahip olduğu ve faz geçişleri meydana geldiği sıcaklık aralığında kapsamaktadır. Oransız faz geçişi üstündeki sıcaklıklarda $T > T_i$ aktivasyonu yaklaşık olarak 4 kat (0,027eV) azalmaktadır. T_i 'nin üstünde ise iletkenlik mekanizmasının değiştiğini görmekteyiz. Aktivasyon enerjisinin azalmasının sebebi, bu sıcaklık aralığında katkı seviyelerinde lokalize olmuş elektron geçişleri kristal iletkenliğine katkı vermesidir. Bir sonraki eğim değişimi 400K civarında görülmektedir. Burada eğim keskin olarak artmakta ve aktivasyon enerjisinin değeri 0,18eV mertebesinde dir. Yine bu değer katmanlara dik yöndeki durumda belirtildiği gibi band-band geçişlerinin aktivasyon enerjisinden düşüktür. Dolayısıyla 400K'nın üstündeki sıcaklıklarda iletkenlik mekanizması katkı seviyeleri-band geçişleri ile gerçekleşmektedir.





Şekil 4.14 TIInS₂ kristalinin Farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(\omega)$ grafikleri.

150K' nin altındaki sıcaklıklarda yine katlara dik bölümünde belirtildiği gibi gerek bu kristalin yarıiletken olmasından dolayı serbest yüklerin çok olması gerek araştırılan frekansların dipol kutuplanmayı ortaya koymak için yeterli olmaması gerekse $1000/T$ grafiğinde bu sıcaklık bölgesinde aktivasyon mekanizmasını ortaya koyan bir eğimin elde edilemeyişi, düşük sıcaklıklarda TIInS₂ kristalinde katmanlara paralel yöndeki iletkenliğin, elektronların katkı seviyeleri arası atlama aracılığı ile gerçekleştiğini göstermektedir. Yüksek sıcaklıklarda aktivasyon enerjisi değeri 0,18eV

olduğundan iletkenlik mekanizması katkı seviyelerinden iletkenlik bandına geçişi ile belirlenmektedir.

Şekil 4.14 farklı sıcaklıklardaki TIInS₂ kristalinin katmanlara paralel yöndeki iletkenlik spektrumları gösterilmiştir. Geniş sıcaklık aralığında TIInS₂ kristalinin katmanlara paralel yöndeki iletkenlik spektrumlarını incelediğimizde iletkenliğin Jonscher formülünün genel şekli itibariyle uyumlu olduğu tespit edilmiştir. Yani net iletkenliğin spektral değişimi, denklem 4.3 şeklindedir. Bu davranış atlama mekanizmasını yansıtan bir davranıştır ve sıcaklığa bağlı olarak eğimler değişmektedir.

Şekil 4.14a'da düşük sıcaklık bölgesi verilmiştir. Yaklaşık olarak 10 KHz'nin üstünde Jonscher formülüne uygun olan spektral kısım ortaya çıkmaktadır. Şekil b,c,d,e de düşük frekans bölgesinde frekansa küçük bir bağımlılık görülmektedir. Düşük frekanslı bölgedeki iletkenliğin bu küçük değişim katmanlara paralel yönde D.C iletkenlik baskın bir rol oynadığını göstermesi açısından önemlidir. Burada bütün frekans aralığında sıcaklıkla iletkenliğin arttığı görülmektedir. Ferroelektrik faz geçişin üzerinde, oransız fazın mevcut olduğu bölgede, iletkenliğin spektral bağımlılığı 10KHz bölgesindedir (Şekil 4.14 c,d). Bu sıcaklık bölgesinde eğrilerin, 10KHz frekans aralığında çakışması bu faza has olan bir özellik olarak ortaya çıkmaktadır. Burada dikkati çeken nokta, 198K ve 213K sıcaklık aralığında bu kesişme noktasının sıcaklıktan bağımsız olmasıdır. Aynı zamanda burada oransız fazda sıcaklıkla D.C iletkenlik artarken A.C. iletkenlik azalmaktadır. Bu davranış Şekil 4.14 d,e de ki sıcaklık aralığında da görülmektedir.

D.C iletkenliğin sıcaklık yükseldikçe artması gayet doğaldır.

$$\sigma = ne\mu \quad (4.9)$$

Bağıntısından da anlaşılacağı gibi sıcaklık arttıkça serbest elektron konsantrasyonu ve yük taşıyıcıların mobilitesi (μ) artmaktadır. Fakat yüksek frekanslı bölgede, saçılma süreçleri baskın bir rol oynadığından dolayı Şekil d ve e'de sıcaklık arttığında iletkenliğin yüksek frekanslı spektral kısmı azalmaktadır. Şekil 4.14 e de yüksek sıcaklık kısmında eğimlerin birbirine yakın olduğunu

görüyoruz. Bu da iletkenliğin katkı seviyesi-band geçişine bağlı olduğunun göstergesidir.

Deneyde kristal üzerine uygulanan zayıf alan 0,5V civarındadır. Alan sıfır dan farklı iken yük taşıyıcı sızması alan yönünde gerçekleşmektedir. Uygulanan alan frekans fonksiyonu olduğundan dolayı oluşan akımda frekans fonksiyonudur. Fluctuastion-dissaipation teoremi, alt operasyon fonksiyonuna dayanarak iletkenliğin frekans fonksiyonu açıklanmaktadır.[Landau and Lifshits ,2000]

Eğer yük taşıyıcı q ise ve yük konsantrasyonu n ise etkileşmede olmayan yük taşıyıcılar için Fluctuation-dissipation theorem'inden,

$$\sigma(\omega) = \frac{nq^2}{K_B T} D(\omega) \quad (4.10)$$

(Bu formül Neinst-Einstein bağıntısı olarak bilinmektedir). Burada $D(\omega)$ frekansa bağlı olan difüzyon katsayısıdır. Difüzyon katsayısı elektron hızlarının zamana bağlı $V(t)$ ve zamandan bağımsız $V(0)$ hızlarının autocorrelation fonksiyonun Laplace dönüşümüdür. Yani

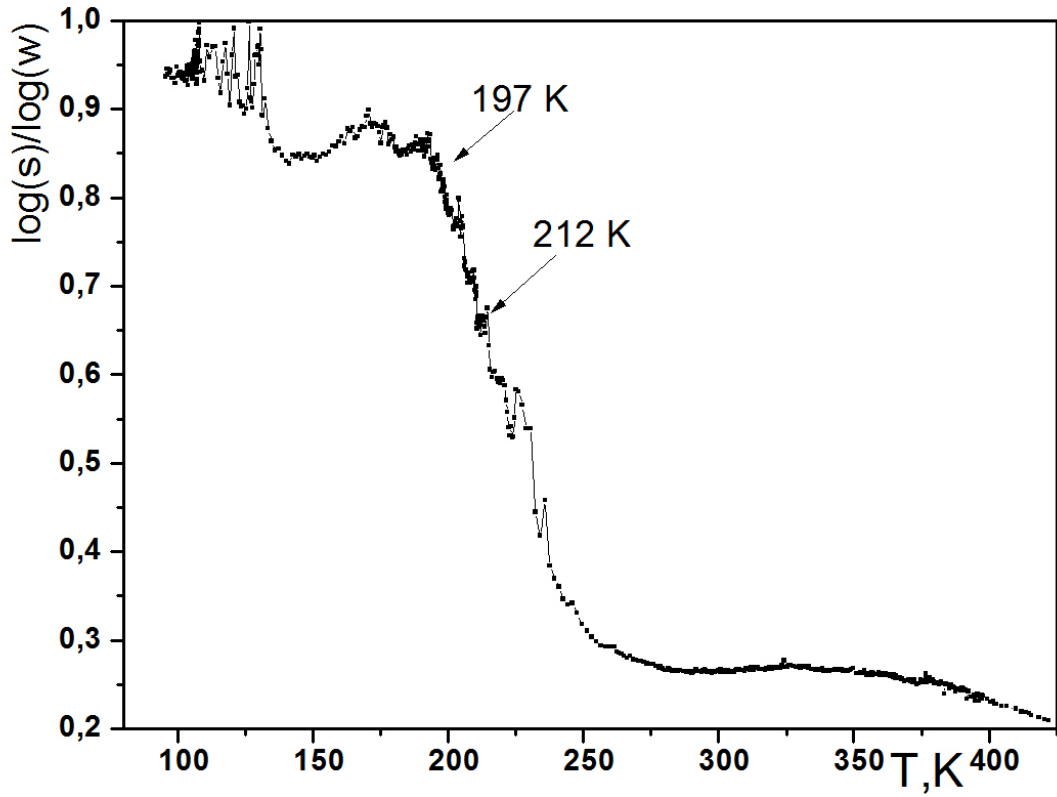
$$D(\omega) = \int_0^{\infty} \langle V(0)V(t) \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (4.11)$$

Bu formülde köşeli braketler autocorrelation fonksiyonun istatistiksel ortalamasıdır. Jonscher formülünden (4.3)

$$s \sim \frac{\log(\sigma)}{\log(\omega)} \quad (4.12)$$

yazılabilir. Böylece TlInS₂ kristali için eğim değerini (4.7) bağıntısına göre elde ettik. s değerinin sıcaklık fonksiyonu Şekil 4.15 de gösterilmiştir. Genelde s parametresi sıcaklık arttıkça yaklaşık olarak lineer şekilde azalması beklenir [Jonscher,1983].

Fakat bu kristalde, faz geçişlerinden dolayı s de ani bir düşüş görülmektedir. Buda faz geçişi ile birlikte iletkenlik mekanizmasının değiştiğinin bir göstergesidir.



Şekil 4.15 TlInS₂ kristalinin katmanlara paralel yöndeki s değerinin sıcaklık fonksiyonu

Jonscher e göre; katı cisimlerde atlama mekanizmasını yansıtan s değeri 1 ile 0,6 arasında değişen değerlerde olmalıdır [Jonscher,1983]. Yaklaşık 150K ile Curie sıcaklığı arasında s sıcaklığa zayıf bağlıdır ve faz geçişine doğru değeri yaklaşık olarak 0,85 ile 0,65 arasında azalmaktadır. 150K'nın üstünde s sabiti faz geçişine çok yakın sıcaklıklara kadar sabit bir değer almaktadır. Bunun sebebini anlamak için dielektrik kayıplar bağıntısına dikkat edelim:

$$\varepsilon'' = \frac{\sigma}{\omega^s \varepsilon_0} \quad (4.13)$$

$$\omega^s = \frac{\sigma}{\varepsilon'' \varepsilon_0} \quad (4.14)$$

burada ϵ_0 sabit olduğundan bu formülden ω ' nin kuvveti olan s ' nin sabit olması, pay da bulunan iletkenlik değeri ile paydadaki dielektrik kayıplar değerinin aynı şekilde değişmesi gerekmektedir.

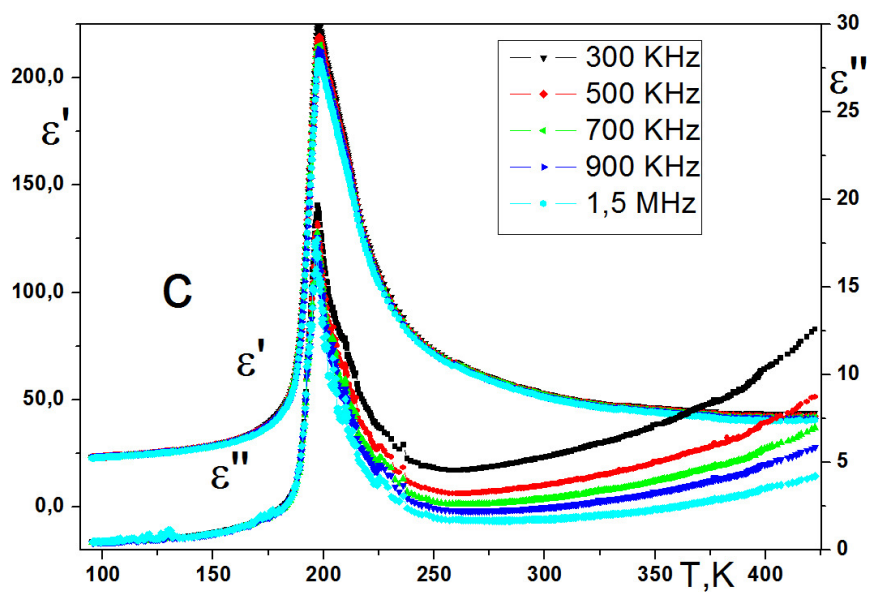
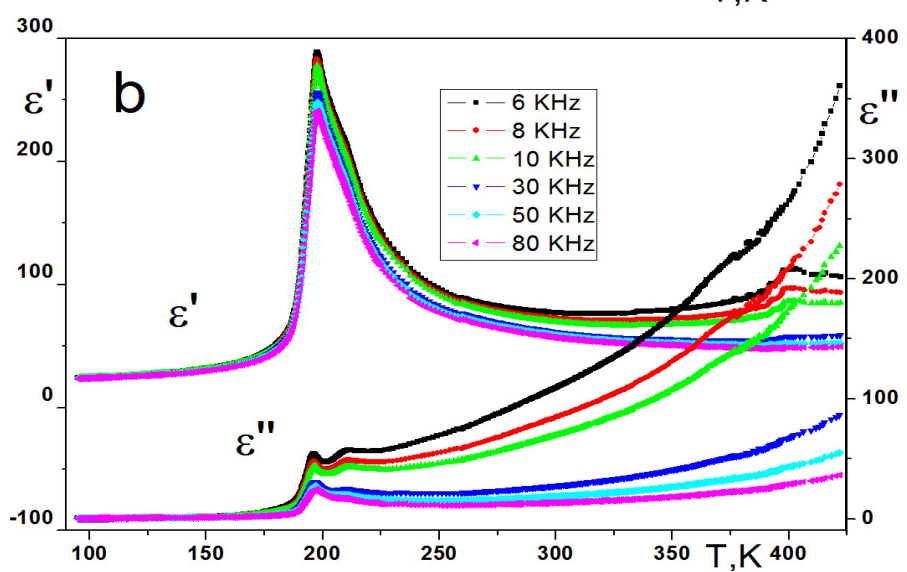
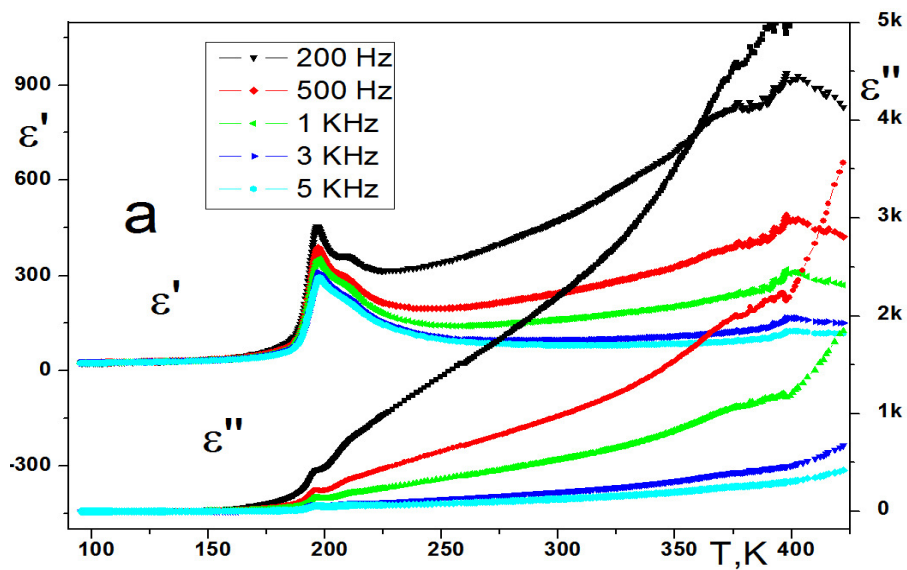
Oransız fazda içinde s değeri daha düşük ve dalgalı şekilde ortaya çıkmaktadır. Bunun sebebi ise oransız fazda soliton duvarlarının yeni bir saçılmaya sebep olduğu düşünülmektedir. Oransız fazın üzerindeki sıcaklıklarda s değeri hızla azalmaktadır. s değerinin 0,6'nın üstünde olması, iletkenliğe atlama mekanizmasından gelen katkının, katkı seviyelerinden gelen katkıları bastırılmasıdır.

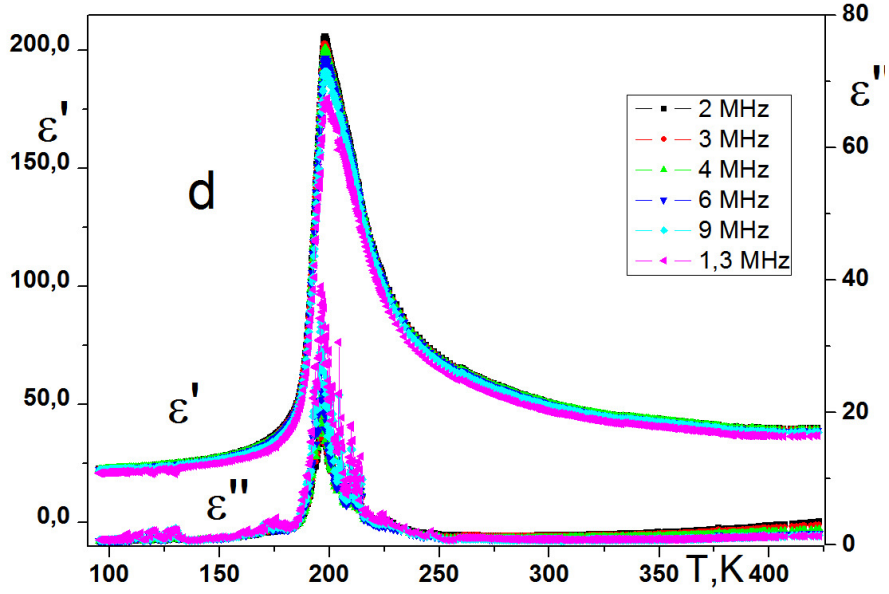
Doğal olarak sıcaklık arttıkça katkı seviyelerindeki yük konsantrasyonu ve mobilite artmaktadır. Düşük frekanslı bölgedeki sıcaklık fonksiyonu olan iletkenlik Şekil 4.15 de görüldüğü gibi $T_1 = 212,5K$ sıcaklığının üstünde s parametresi ani bir değişime uğramaktadır. Bunun sebebi ise katkı seviyelerinin, sıcaklık arttıkça hızla iletkenliğe katkı vermesidir.

4.1.2.2 TIInS₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu

Daha önce TIInS₂ Kristalinin dielektrik özelliklerinden bahsederken ardışıklı faz geçişlerinin olduğunu ortaya konmuştur. Öyle ki ferroelektrik faz geçişi 197,5K'da oransız (incommensurate) faz geçişi 212,5K'da ferroelektrik faz geçişi ve oransız faz içinde ϵ' 'ın 204K'da bir piki ve 207K'da zayıf bir anomali gözleniyordu. Bu araştırmada kullanılan kristalde iki anomali veya diğer bir deyişle sadece oransız faz geçişi ve ferroelektrik faz geçişlerine bağlı pikler gözlenmiştir (Şekil 4.16) . Daha önce yapılan deney sonucuna göre düşük frekansta 204K ve 207K'daki anomaliler Şekil 4.16 a' da görülmemektedir. Diğer bir önemli özellik ise faz geçişi yakınlarında dielektrik geçirgenliğin ölçtüğümüz frekans aralığında büyük bir dispersiyonu göstermektedir.

Bu iki sonuç arasındaki farklılık daha önce elde edilen 204 K ve 207K'daki pik, kusurlar tarafından kristalin iç alanına etkiyen ilave alanın bir sonucudur. Böylece oransız fazda dielektrik geçirgenliğin piki gözlenmiştir.





Şekil 4.16 TIInS₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\epsilon'(T)$ ve $\epsilon''(T)$ grafikleri.

Böyle bir davranış yerelleşmiş kusurlar tarafından ortaya çıkar ve yerelleşmiş kusurlar bu sıcaklıklar yakınında yerel olarak kristal simetrisinin değişmesine yol açar ki bu da dielektrik geçirgenliğin piki şeklinde oransız fazda çıkmasına neden olur. Bu da kusurların kutuplanmış durumunun indüklendiğini göstermektedir.

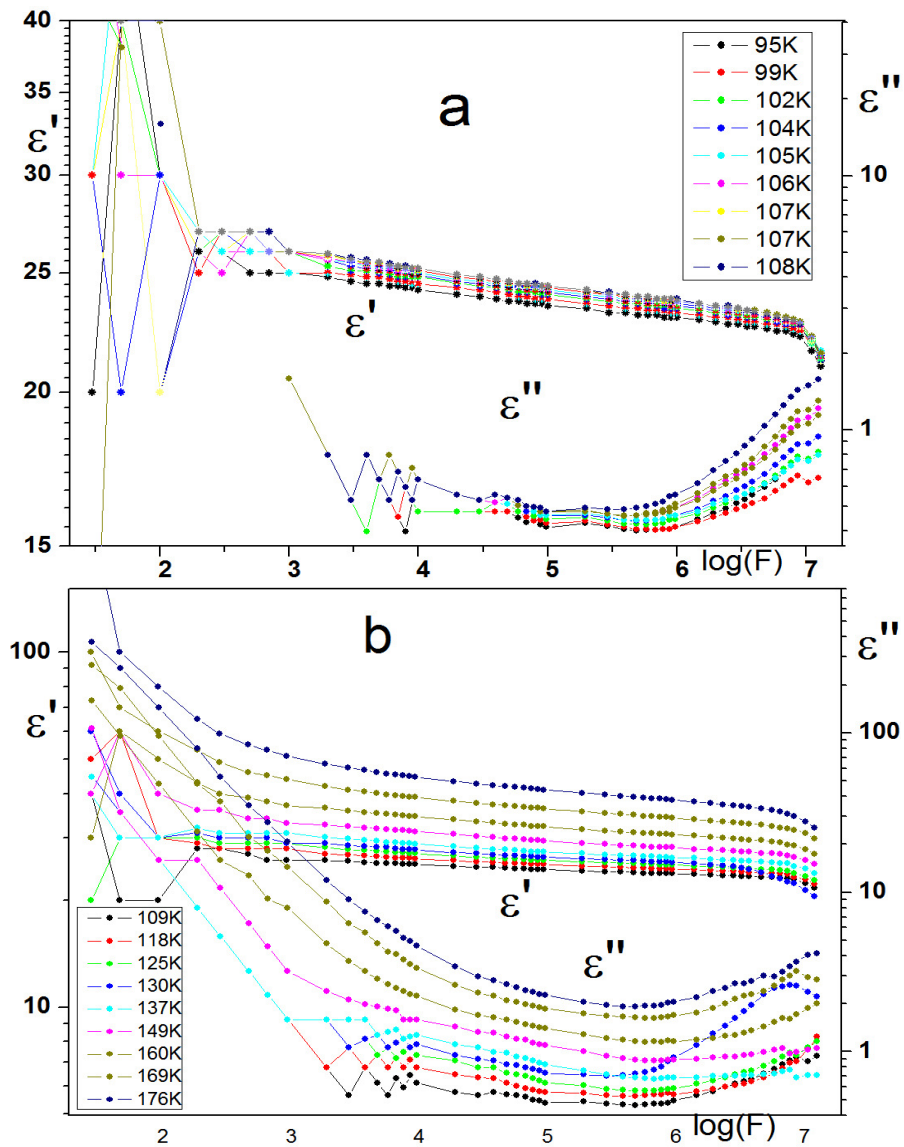
Yapılan araştırmada oransız fazda bir pik ve derin dispersiyon ortaya çıkmaktadır. Yerelleşmiş kusurlar ile indüklenmiş dielektrik geçirgenliğin piki zamanla kaybolduğu tahmin edilmektedir. Yani yerelleşmiş kusurlar delokalize olup kristal iç alanının azalmasına neden olmuştur. Bunun sonucunda genel olarak tüm sıcaklık bölgelerinde önceki araştırmalara göre dielektrik geçirgenlik yaklaşık olarak yarı yarıya azalmıştır. Kusurların delokalize olması onların bağlı durumlarını kaybetmeleri demektir. Bağlı durumların kaybolması kristal hacminde hareketli kusurların ortaya çıkması demektir. Diğer bir değişle kusurlar sisteminde mobilitenin artması kristalin toplam iletkenliğini de artıracaktır.

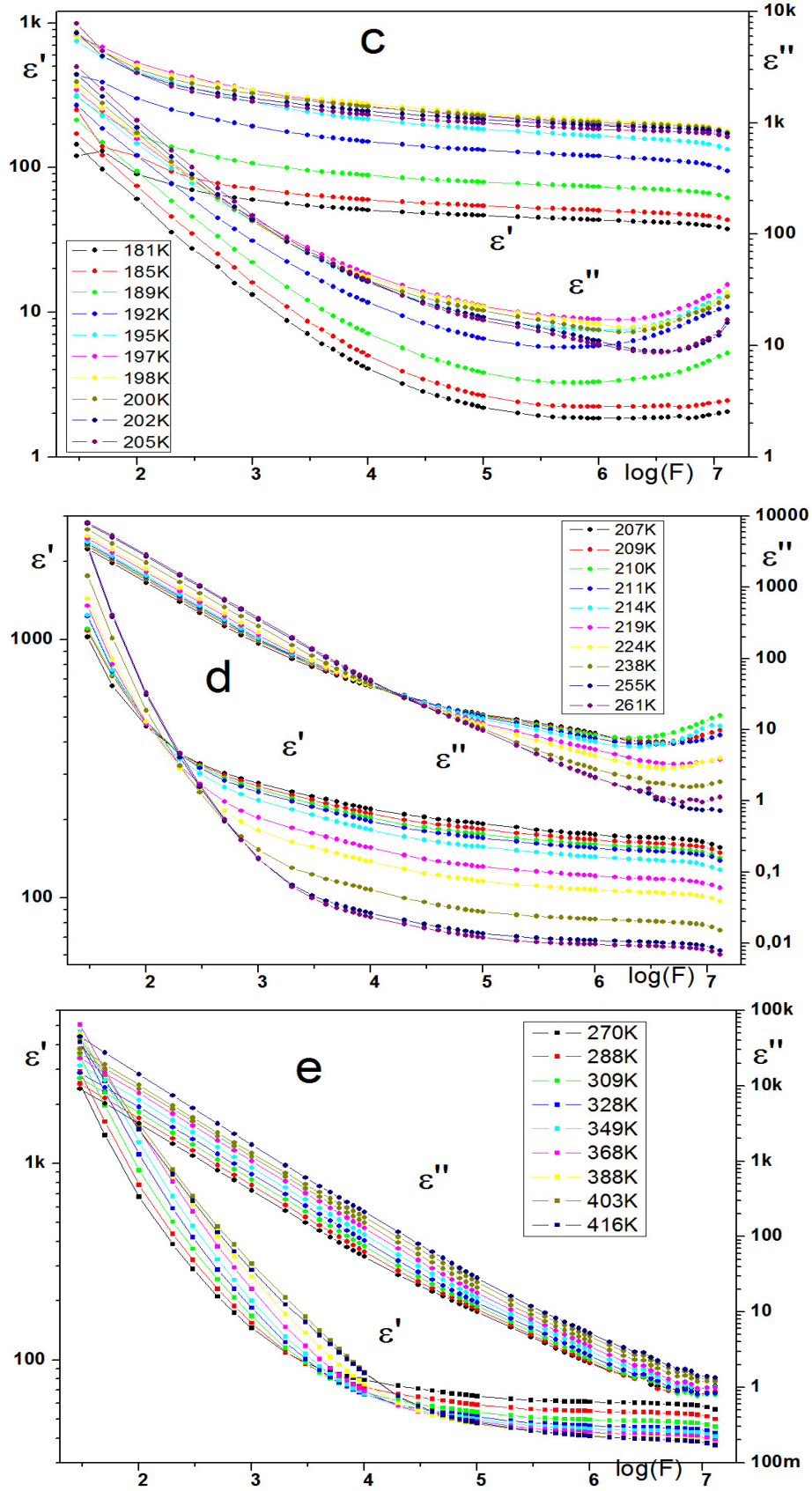
Bu yüzden Şekil 4.16 de gösterilen katmanlara paralel yöndeki gerçek dielektrik geçirgenliğin dispersiyonu kristalde kusurların ve yük taşıyıcıların mobilitelerinin artmasından kaynaklandığı söylenebilir. Bu olayın etkisi oransız faz geçişinde önceki araştırmalarda pik şeklinde olan dielektrik geçirgenlikte omuz

şekline dönüşmüştür. Yüksek frekanslara doğru bu anomalinin kaybolduğu görülmektedir.

197K'da çıkan ferroelektrik faz geçişi (T_c) frekans azaldıkça pikin 1K ya kadar arttığı görülmektedir. Aynı zamanda T_c 'de derin dielektrik dispersiyon, gözlemlenmektedir. Bu elde edilen sonuç iletkenliğin geniş sıcaklık ve frekans aralığında gerçel dielektrik geçirgenliğin dispersiyon özelliğini belirtmektedir.

Sanal dielektrik geçirgenliğin sıcaklık fonksiyonunda 1MHz üzerindeki değerlerde dielektrik geçirgenliğin pik değeri faz geçişi civarında artmaktadır. Bu frekans aralığındaki iletkenlik katkısı sanal dielektrik geçirgenlikte artık görülmemektedir.





Şekil 4.17 TIInS₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\epsilon'(w)$ ve $\epsilon''(w)$ grafikleri.

Ferroelektrik faz geçişinde ve oransız fazda polar bölgelerden katkı, sanal dielektrik geçirgenliğin rezonans soğurulmasına doğru gittiğinden dolayı arttığı söylenebilir. T_i sıcaklığının üstünde ise eğri normal seyrine devam etmektedir. Yani T_i nin üstünde herhangi bir polar bölgenin olmadığına göstergesidir.

Burada dikkate değer bir diğer nokta Şekil 4.16a ve b de görüldüğü gibi yüksek sıcaklıklarda ve düşük frekanslarda dielektrik geçirgenliğin sanal ve gerçel kısmının davranışdır. Bu bölgedeki ani artış yine yarıiletkenlere has olan katkı-band geçişlerinin gerçekleşmesinden kaynaklanmaktadır. Ayrıca tüm frekanslarda her iki dielektrik geçirgenlik fonksiyonunda faz geçişlerine ait özel davranışı göstermektedir.

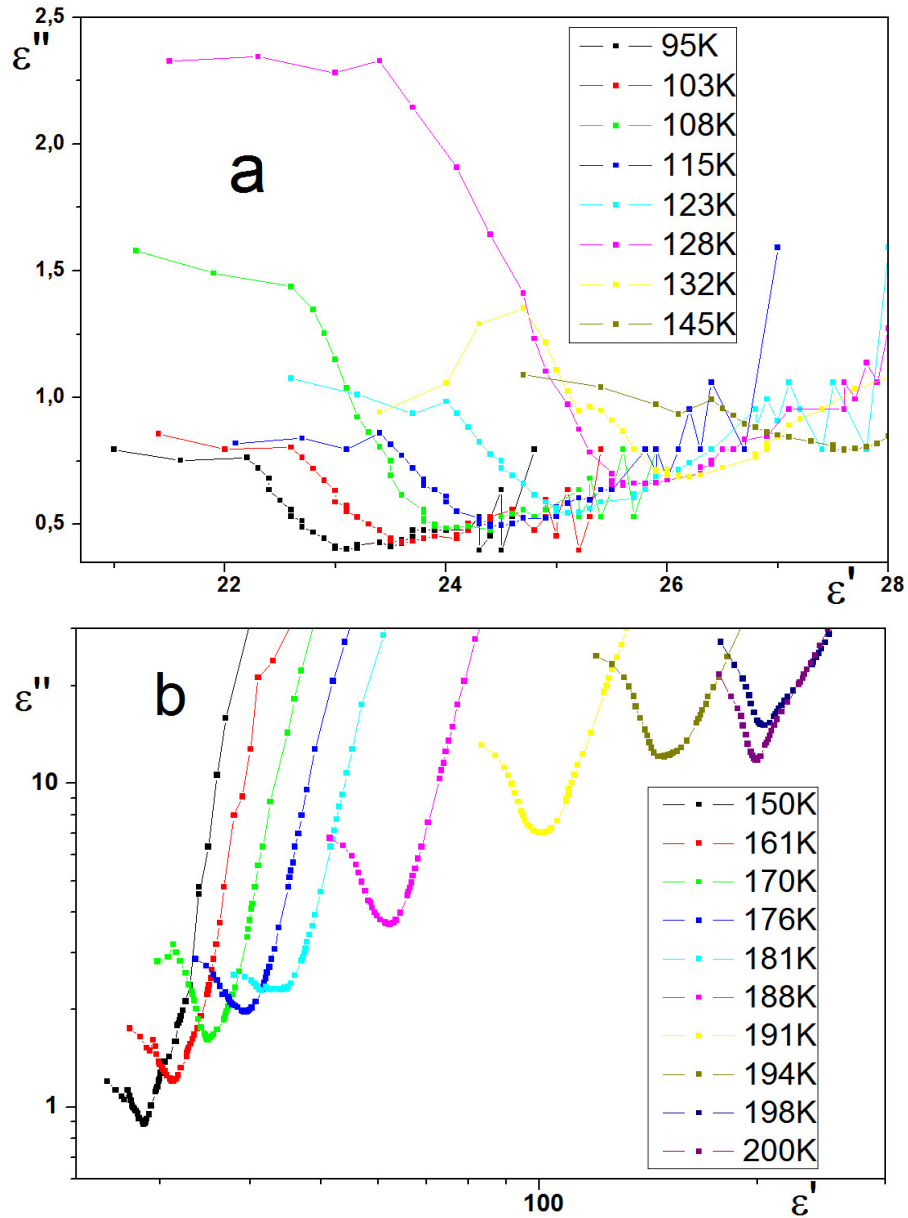
Şekil 4.17 de $TlInS_2$ kristalinin gerçel ve sanal dielektrik geçirgenliğin katmanlara paralel yöndeki farklı sıcaklardaki frekans bağımlılığı görülmektedir. Skalasının çok farklı olmasından dolayı birkaç frekans aralığına ayrılmıştır. Şekil 4.17 a ve b de görüldüğü gibi 150K ya kadar olan sıcaklık bölgesinde ϵ' frekansa lineer bağlı bir durum sergilerken 150 K dan sonra Şekil 4.17 c,d ve e de üstel bir bağımlılık söz konusudur. Ayrıca 220K ya kadar olan kısımda MHz ler bölgesinde ikinci bir dispersiyon sergilemektedir ancak frekans çerçevesi yeterli olmadığından sadece bu davranışın başlangıç kısmını görmekteyiz. Şekil 4.17 e de 270K-400K sıcaklıklarında sıcaklıktan bağımsız bir kesişme noktası görülmektedir. Bu da bu kristale özgü titreşim frekanslarının bu civarda olduğunun göstergesidir. Şekil b de eğim T_i sıcaklığında pik halini almaktadır. T_i de sanal dielektrik geçirgenliğin varlığı 3 KHz ile 20KHz arasında ortaya çıkmaktadır.

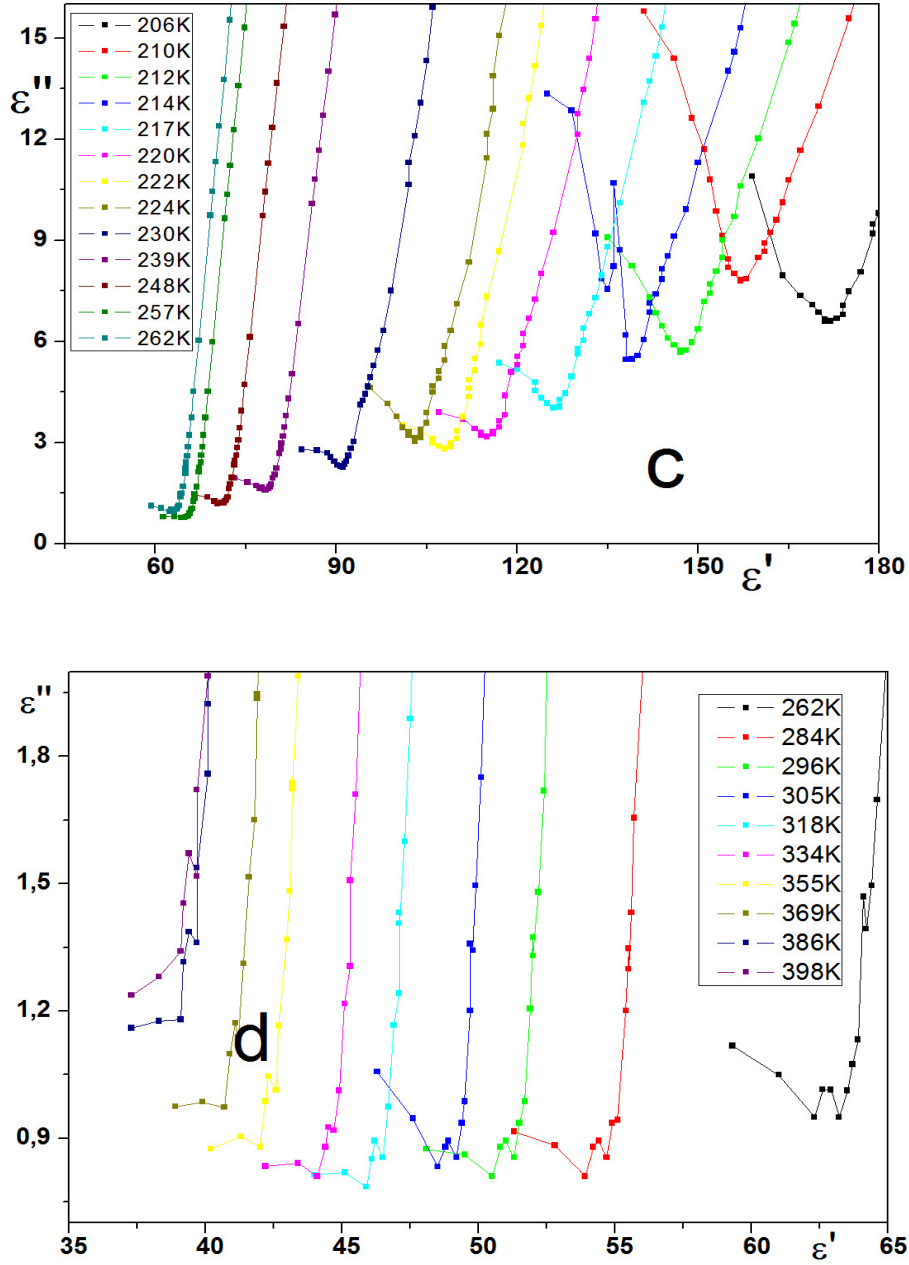
Frekans yükseldikçe T_i deki pik kaybolup bir omuzcuk halini almaktadır (Şekil 4.17 d) Ortaya konulan iletkenliğin durumu, sadece gerçel değil, sanal dielektrik geçirgenlikte kendini göstermektedir. Dikkat çekici bir diğer nokta bölüm 4.1.1.2 de anlatıldığı gibi burada da serbest yüklerin davranışının yansımasına benzer şekiller faz geçişiyle birlikte ortaya çıkmakta. Özellikler Şekil 4.17 e de görüldüğü gibi sanal kısmın logaritmik ölçekli skalada yaklaşık -1 eğim şeklinde davranışı ve gerçel kısmın üstel davranışı, serbest yüklerin aktivasyon mekanizması ile iletkenlik sergilediği sıcaklık bölgesini tıpkı $1000/T$ grafiğinde olduğu gibi 400 K üzerindeki sıcaklıklarda gerçekleştiğini ortaya koymaktadır. Bu sıcaklıktan düşük sıcaklıklarda ise hem atlama mekanizması hem de aktivasyon mekanizmasını bir arada

gerçekleştiğini göstermektedir. Faz geçişinden düşük sıcaklıklarda bu mekanizmanın tamamen altlamalı olduğu yüksek sıcaklıklardan tamamen farklı davranışından dolayı açık bir şekilde görülmektedir.

4.1.2.3 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Cole- Cole Diyagramları

Şekil 4.18'de TlInS₂ kristalinin katmanlara paralel yöndeki farklı sıcaklıklardaki Cole-Cole diyagramı görülmektedir. Dipol-dipol durulma süreçleri genelde Cole – Cole diyagramlarının aracılığıyla incelenir.





Şekil 4.18 TIInS₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki Cole_Cole diyagramları.

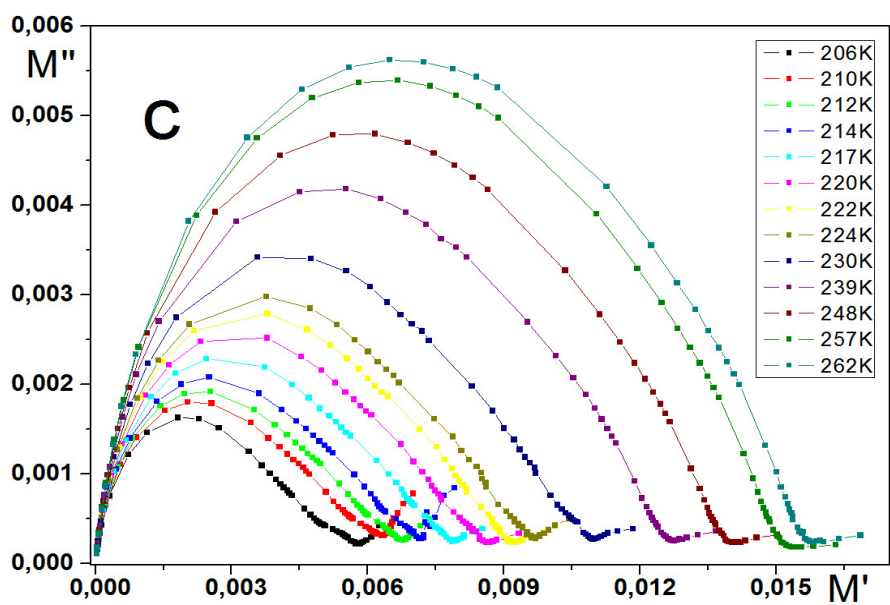
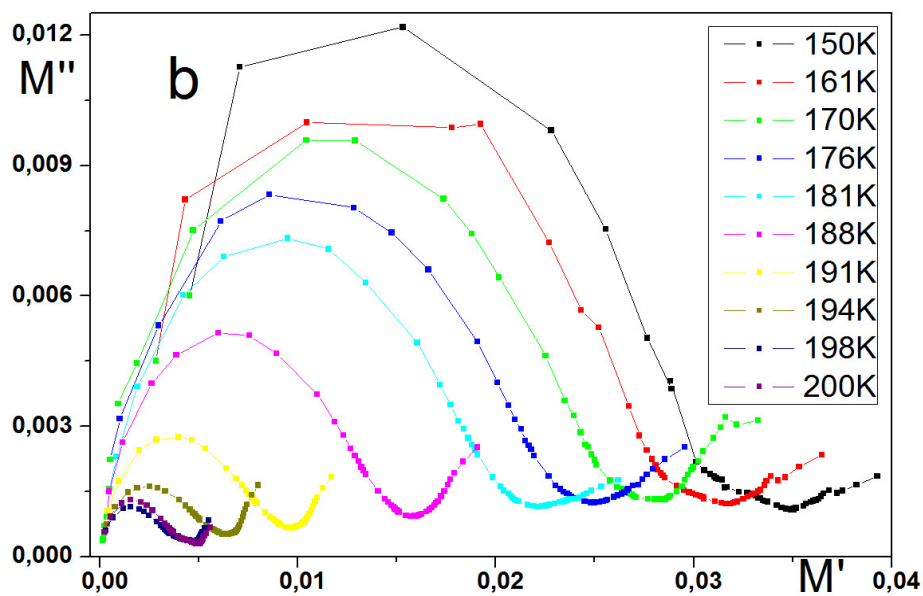
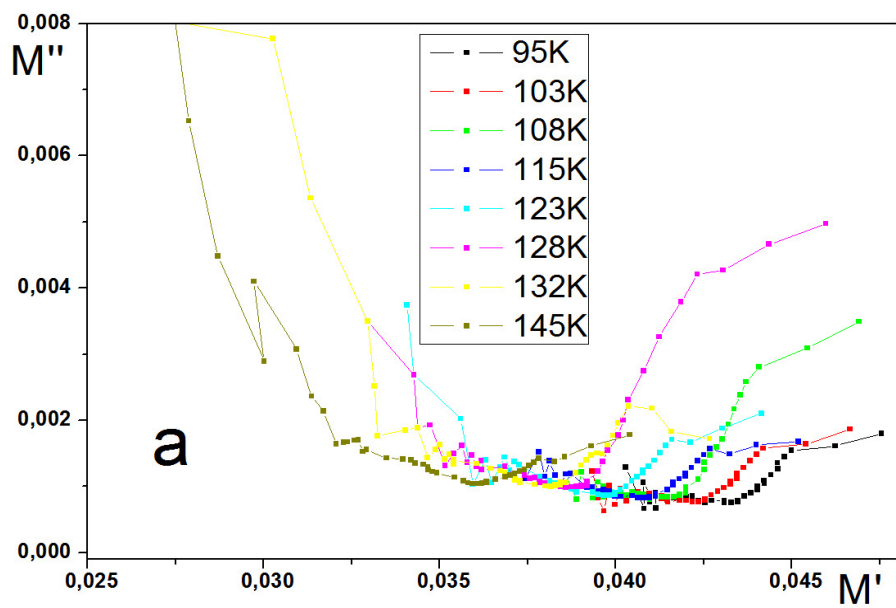
Fakat dipol durulmasının $\omega\tau=1$ maksimumları bu araştırmada gözlenmemiştir. Bu durum incelenen frekans aralığının bu sınırların dışında olmasından kaynaklanmaktadır. Düşük frekanslarda oluşan “kuyruklar” kristalde iletkenliğin durulma süreçlerinin varlığını göstermektedir. Diyagramın yarı dairesel yörüngeye oturmamasından dolayı kullandığımız frekans aralığında TIInS₂ dipol durulmanın öz frekanslarından çok uzaklarda olduğumuz söylenebilir.

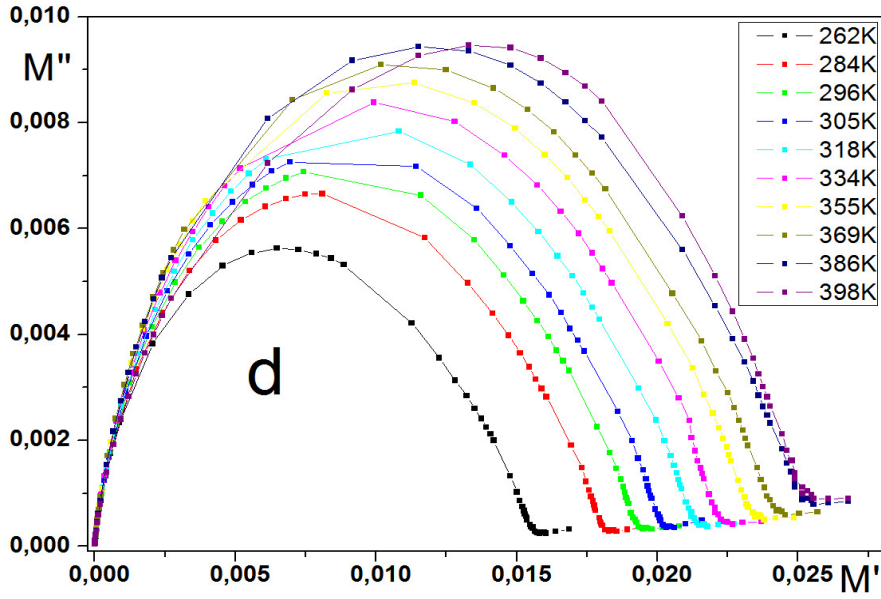
Şekilde düşük sıcaklıklarda tıpkı katmanlara dik de görüldüğü gibi dielektrik geçirgenliğin yüksek frekanslarda çok küçük değerler aldığından oluşan bir maksimumun etkileri görülmektedir. Fakat maksimumdan geçmemektedir çünkü çalıştığımız frekanslardan daha yüksek frekanslarda bir maksimuma sahiptir. Ayrıca sıcaklık artınca atlamalı iletkenlikten gelen dispersiyonu, bant geçişlerinden gelen dispersiyon tarafından bastırılmakta ve dielektrik sabitin artmasıyla bu görünüm kaybolmaktadır. Cole-Cole diyagramlarından Şekil 4.18 den de görüldüğü gibi herhangi bir yarım çembere oturma söz konusu olmadığından durulma zamanı bulamamaktadır. Bu yüzden argan diyagramlarını kurmak gerekmektedir.

4.1.2.4 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları

Önceki bölümde iletkenlik spektrumları incelenmişti ve dikkat çeken önemli husus olarak, iletkenliğin frekans fonksiyonu olarak 2 bölgede ölçeklendiği (scaling) gözlenmişti. Düşük sıcaklıklar bölgesinde yaklaşık olarak 90K – 155K arasında D.C iletkenliğin çok düşük değerlere sahip olduğu görülmektedir. Sıcaklık yaklaşık olarak 165K'nın üstündeki değerlerde D.C diyebileceğimiz bir frekans aralığında artık hafifte olsa bir frekans fonksiyonu ortaya çıkmaktadır (Şekil 4.14). 165K'nın üzerindeki sıcaklık bölgesinde ölçeklenmeye bağlı olarak iletkenliğin frekans fonksiyonunda iki farklı eğim gözlenmektedir. Bu iki kısım da içinde sıcaklık bağımlılığı gözlenmektedir. Fakat önceki bölümde iletkenlik spektrumların düşük frekanslı kısımda ortaya çıkan eğim değeri 0,2 ile 0,3 arasında olduğu görülmüştür. Bu değerler Jonscher evrensellik bağıntısının s değerinin çok altındadır. Böylece buradan düşük frekanslı kısmın D.C iletkenliği ile bağlı olan durulma zamanlarını elde edileceğini söyleyebiliriz. Elbette D.C akım frekanstan bağımsız olduğunu iyi biliyoruz ama TlInS₂ kristali politipli olduğundan dolayı, doğal olarak gerçek kristalin kusurlu yapısından kaynaklanarak doğru akım iletkenlik spektral kısmının zayıf da olsa yine de frekans bağımlılığı gözlenmektedir.

Elde edilen elektrik modülünün argan diyagramlarında ferroelektrik faz geçişinden daha düşük sıcaklıktaki kısımlar Şekil 4.19 a ve b' de görülmektedir. Şekil 4.19.b' de sıcaklık yükselince yüksek frekans kısmında çember biçiminin dışında kalan kanatlar





Şekil 4.19 TIInS₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki elektrik modülünün argand diyagramı.

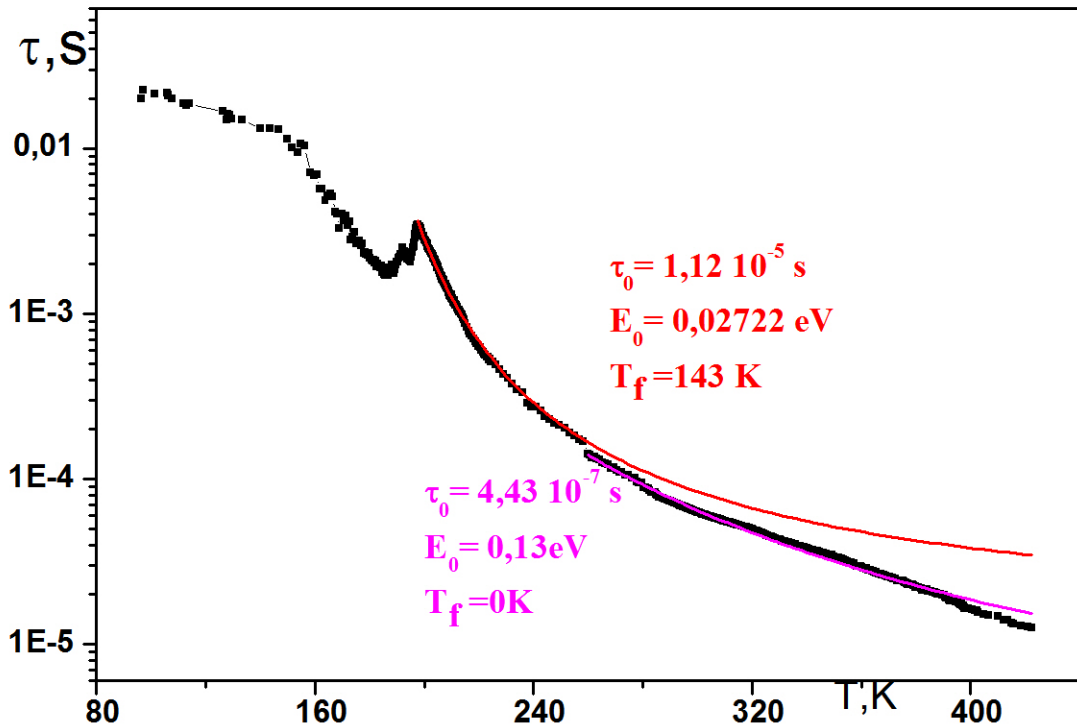
gözlenmektedir. Sıcaklık yükselince Şekil 4.19. b'de yük taşıyıcıların durulma zamanlarının spektral dağılımı genişlemekte, ferroelektrik faz geçişine yaklaşıldığında ($T_c = 198$) spektral dağılım daha da yaygınlaşmaktadır. Bunun sebebi bölge duvarlarının sıcaklıkla aktive edilmesidir. Faz geçişine yaklaşıldığında bölge duvarlarının salınım genliği ve yük taşıyıcıların bu bölge duvarlarının hareketinden dolayı saçılmasından kaynaklanmaktadır. Ferroelektrik faz geçişi geçildiğinde oransız fazda elektrik modülünün argand diyagramının dairesel çizgisinden saptığı ve oluşan yeni uzantı Şekil 4.19 b de görülmektedir. Bu uzantı sadece oransız faza has olan bir davranıştır. Bu da elektrik modülüsün sanal kısmının frekans fonksiyonunda τ_{DC} ile bağlı olan maksimum dışında, yüksek frekanslı bölgede, bir dağılım meydana gelmektedir. Yani oransız fazın oluşumu ile yeni bir durulma zamanı ortaya çıkmaktadır. Elektrik modülüsün sanal kısmının frekans fonksiyonları D.C iletkenlikle bağlı olan durulma zamanlarının sıcaklık fonksiyonunu elde etmeye imkân sağlamaktadır. Aynı zamanda oransız fazın oluşumu ile ortaya çıkan durulma zamanlarını da ortaya koymuştur (Şekil 4.21).

Bu şekillerin ortak noktası maksimum noktasına göre simetrik olmamasıdır. Buda aslında bu sıcaklık aralığında en az iki iletkenlik mekanizmasının bir ara olduğu durumu sergilemektedir. Bu mekanizmalarda yukarıda bahsettiğimiz

sebeplerden dolayı atlamalı ve katkı-band geçişi mekanizmalarıdır. Yüksek sıcaklıklara ve düşük sıcaklıklara gidildikçe çemberlerin daha simetrik olması bu iki mekanizmanın giderek bir birinden ayrıştığını göstergesidir.

4.1.2.5 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Durulma Zamanı

Şekil 4.20'de TlInS₂ Kristalinin Katmanlara paralel yöndeki argand diyagramlarından elde edilen durulma zamanının sıcaklık fonksiyonu görülmektedir. D.C iletkenliğin durulma zamanının sıcaklık fonksiyonu, sıcaklık yükseldiğinde azaldığını görüyoruz ama ferroelektrik faz geçişinde bir maksimum gözlenmektedir. Bu maksimumun gözlenmesi ferroelektrik faz geçişinde yapının değişimi ile bağlıdır. Oransız faz geçişinde (T_i) de beklenen bir anomali gözlenmektedir. 260K ile faz geçişi sıcaklık bölgesine kadar olan durulma zamanının sıcaklık fonksiyonu y eksenini logaritmik ölçekli skalada olmasına rağmen düz bir doğru şeklinde olmamaktadır.



Şekil 4.20 TlInS₂ Kristalinin Katmanlara paralel yöndeki argand diyagramlarından elde edilen $\tau(T)$ grafikleri

Buda 4.16 daki Arrhenius formülüne değil 4.15 deki Voger-Fulcher formülüne uygun davranış sergilediğinin göstergesidir. Durulma zamanının elde edilen grafiği bu sıcaklık bölgesinde $1000/T$ den elde edilen aktivasyon enerjisine yakın alınarak uydurulduğunda T_f değerinin katmanlara dik yönde alınan değere oldukça yakın elde edilmiştir. Buda $TlInS_2$ kristallerinde 140-150K civarında bir camı faz geçişine uğradığını oldukça net bir şekilde ortaya koymaktadır.

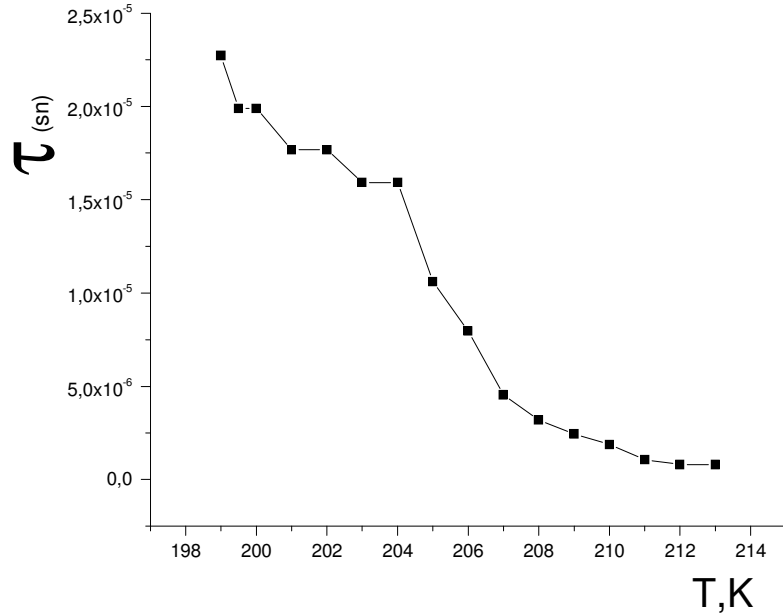
$$\tau = \tau_0 e^{\frac{E_0}{T-T_f}} \quad \text{Vogel-Fulcher} \quad (4.15)$$

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{E_0}{T}} \quad \text{Arrhenius} \quad (4.16)$$

Bu grafikte ilgi çekici bir diğer durum ise 260 K dan sonraki durulma zamanını sıcaklık fonksiyonunun Arrhenius ($T_f=0$ için) formuna uygun davranması ve elde edilen aktivasyon değerinin o sıcaklık bölgesinde $1000/T$ grafiğinde elde edilen değer mertebesinde olmasıdır. Buradan da yine bu kristalde yüksek sıcaklıklarda klasik Debye davranışına benzer bir davranış sergilediğini söylemek mümkündür. Yüksek sıcaklıklarda durulma zamanı yük taşıyıcıların katkı seviyesi – band geçiş ile bağlıdır.

Oransız faza bağlı olan durulma zaman grafikleri Şekil 4.21’ de görülmektedir. Bu durulma zamanları elektrik modülün sanal kısmının frekans fonksiyonları hesap edilmiştir. Bu grafikte açık Şekil 204K’de durulma zamanının bir anomalisi görülmektedir. Bu anomali Şekil 4.2 de gösterilen $TlInS_2$ kristalinin dielektrik geçirgenliğin 204K de bir maksimumdan geçmesine bağlıdır. Yani $TlInS_2$ kristalinde 198K ve 213K arasında iki oransız fazın meydana gelmesi söz konusudur ve bu iki oransız fazla ilgili durulma zamanları tespit edilmiştir.

Şekil 4.21’den sıcaklık yükseldiğinde durulma zamanlarının azaldığı görülmektedir. 198K - 204K ve 204K-213K sıcaklıkları arasında yaklaşık olarak üstel bir fonksiyon şeklinde azaldığını söyleyebiliriz. Durulma zamanını sıcaklık fonksiyonunun Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan davranışı tespit edilmiş ve bu davranışa uygun camı geçiş sıcaklığı 126K olarak tespit edilmiştir.



Şekil 4.21 Oransız faza bağlı olan durulma zaman grafiği.

Sıcaklık azaldığında durulma zamanının artmasının sebebi nedir? Oransız fazda sıcaklık aşağı indikçe domen yapıya benzer bir yapı olan soliton duvarlarının ortaya çıktığı literatürden bilinmektedir. Soliton duvarları bir yerel yük oluşumdur. Ferroelektrik faz geçişine yaklaşıldığında bu soliton duvarları büyümektedir ki bu da yük taşıyıcının soliton duvarlarıyla karşılıklı etkileşmesi sonucu durulma zamanlarının artmasının sebebidir.

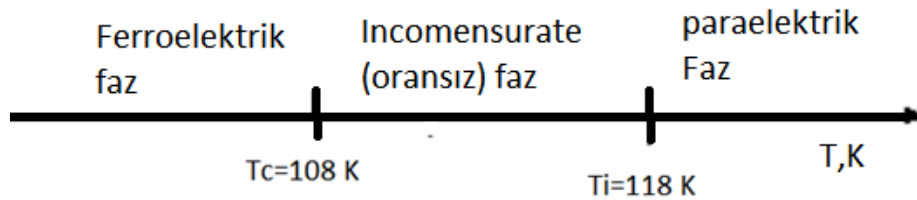
Bu anlatılan süreçler oransız faz içinde 204K'nın altında ve üstündeki bölgelere has olan özelliklerdir. 198K ve 204K fazının içindeki durulma zamanları 204K ile 213K arasındaki zamanla kıyasla daha büyüktür. Bu olay bahsedilen bölgedeki soliton duvarlarını daha büyük olduğunun göstergesidir.

4.2 TlGaSe₂ Kristali İle İlgili Önceki Çalışmalarda Elde Edilen Bulgulara Genel Bir Bakış

Katmanlı yarıiletken kristal yapıya sahip üç bileşenli TlGaSe₂ kristalleri $A^3B^3C_2^6$ ailesine aittir. Katmanlı ferroelektrik yarıiletken TlGaSe₂ kristalinin katmanlara paralel ve dik yönde elektriksel özellikleri 30 Hz-13 MHz frekans ve 80K-300 K sıcaklık aralığında empedans spektroskopisi yöntemi ile incelenmiştir.

Yapısal, [McMorrow et al ,1990] termal[Abdullayev et al ,2005], [Plyushch et al ,1999], akustik[Ilisavskiy et al ,1999], [Suleymanov et al ,1991], optik[Abdullaeva et al ,1989], [Abdullaeva et al ,1987] , [Yamamoto et al ,2002] , dielektrik[Allahverdiev et al ,2000],[Aliyev et al ,2003], pyroelektrik[Seyidov et al ,2006] ve diğer çalışmalardan faydalanarak $TiGaSe_2$ kristalinde ikisi hacimde biri yüzeyde olmak üzere güvenilir faz geçiş durumunu belirlendi .Yüksek sıcaklıktaki parafaz dan $T_i=118K$ deki oransız faza ve sonra $T_c=108K$ deki ferroelektrik faz geçişi ile hacim içinde gerçekleşen bir dizi faz geçişi sergilediği çok sayıda yapılan deney sonucunda gösterilmiştir [Mikailov et al ,2005]. $T_c = 108K$ deki ferroelektrik faz geçişi tabaka düzlemleri içindeki bir displacive improper tipi kendiliğinden kutuplanmadan kaynaklanmaktadır. $TiGaSe_2$ kristallerinde geniş bir sıcaklık aralığında çok sayıda yapılan çeşitli deneysel araştırmalarda [Kyeong and Albright, 1991], [Suleymanov et al ,1993], [Banis et al ,1987], [Senturk et al ,2005], faz geçiş noktasının yakınında, mekanik, optik, dielektrik ve elektriksel olarak alışılmadık davranışlar sergilemesi nedeniyle son yıllarda büyük ilgi çeken bir ferroelektrik-yarıiletken malzemedir. [Yee and Albright,1991], [Hochheimer, 1988], [Panich and Kashida,2008], [Panich,2008], [Kashida et al ,1998] .

Yukarıda belirtilen yapısal faz geçişleri dışında, $TiGaSe_2$ tek kristalleri halen tamamen açıkça anlaşılammış anormal bir dizi özellik sergilemektedir. Özellikle, yapılan bir dizi çalışma sonucunda geleneksel faz geçiş sıcaklıklarından oldukça uzak sıcaklıklarda önceden bilinmeyen yeni bir faz geçişi belirlenmiştir [Seyidov and Suleymanov,2008] .



Şekil 4.22 $TiGaSe_2$ kristalinin faz geçişler diyagramı

Yapılan son çalışmalarda [Seyidov et al ,2006] $TiGaSe_2$ kristallerinin optik, elektriksel ve hatta termal özellikleri $145-190K$ sıcaklık aralığında normal yarıiletken

davranışı altüst eden iç elektrik alanlar tarafından önemli ölçüde etkilendiği gösterilmiştir. Gözlenen bu davranış elektronik alt sisteminde yer alan dengesiz bir faz geçişinden kaynaklandığı gösterilmiştir [Salehli et al ,2007], [Seyidov and Suleymanov,2008]. Jonscher ve Pickup [Jonscher and Pickup,1985] ın ardından, böyle bir faz geçişi tipine, bu tezde "elektronik faz geçişi." [Salehli et al ,2007] olarak adlandırılmıştır. Yapılan ölçümler sonucu TIGaSe₂ kristalinde T~135K yakınında bir yüzey faz geçişi görülmekle beraber bu yüzeyinin doğası hala net değildir [Agladze et al ,1911].

145K-190K sıcaklık aralığında, iç alanlar doğrusal olmayan I-V karakteristiği yol açmış ve elektrik alan kararsızlıklarının bir sonucu olarak akım dalgalanmaları şeklinde kendilerini ortaya koymuştur. İki bölümden oluşan gerçek kristalin yapısı için, kalitatif kristal modeli önerildi. Birinci kısım S-tipi I-V karakteristik sergileyen homojen olmayan bölge ve diğeri homojen lineer kısmın. [Seyidov, 2009] Homojen olmayan bölge civarında biriken yükler, yüksek alan emisyonuna ve birikme boşalma olayından dolayı da iç elektrik alanların dalgalanmalarına neden olmaktadır. Böyle basit bir model incelenen kristallerin akım davranışlarını açıklanabilmesine imkân vermektedir. Önerilen bu modelle incelenen kristallerdeki akım davranışlarını açıklanabilmesiyle birlikte aynı zamanda TIGaSe₂ kristallerin düşük frekanslı dielektrik spektroskopi davranışlarında çok açık bir şekilde anlaşılmasında önemli bir rol oynamıştır.

Yarıiletkenlerdeki durulma süreçlerine uzay yükü katkısının araştırılmasında düşük frekanslı AC-empedans analizi yaygın olarak kullanıldığı bilinmektedir [Salehli F et al,2007] . Bununla birlikte, TIGaSe₂ kristallerin dielektrik özelliklerinin geleneksel faz geçiş sıcaklıkları bölgesinden uzaktaki sıcaklıklarda, düşük frekanslarda ve geniş bir sıcaklık bölgelerinde ayrıntılı bir araştırma yoktur. Elde edilen sonuçlar kutuplanma yönünde bağlı olarak katlar düzlemine paralel ve dik 145-190K sıcaklık aralığında gerçekleşen durulma süreçleri arasındaki farkı açıkça göstermektedir.

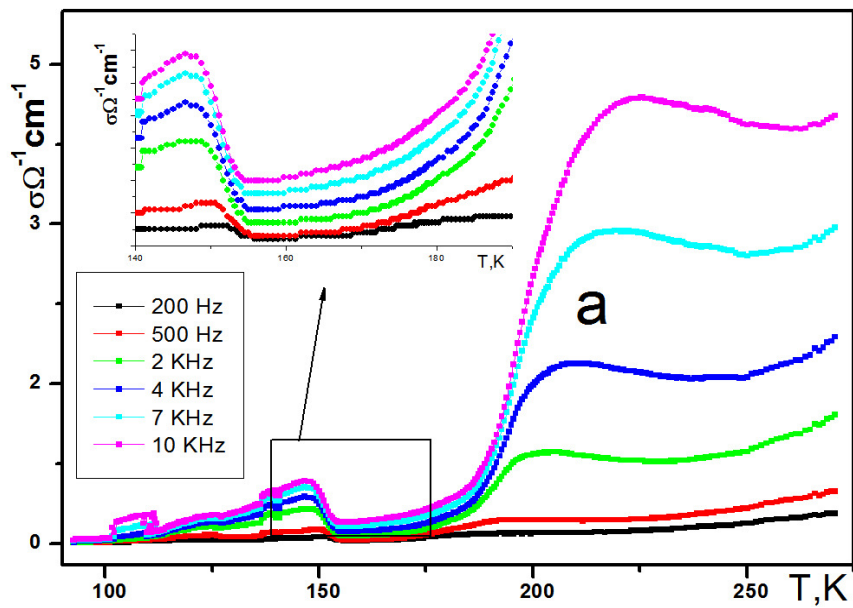
4.2.1 TIGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yönde Dielektrik spektroskopi Yöntemiyle İncelenmesi

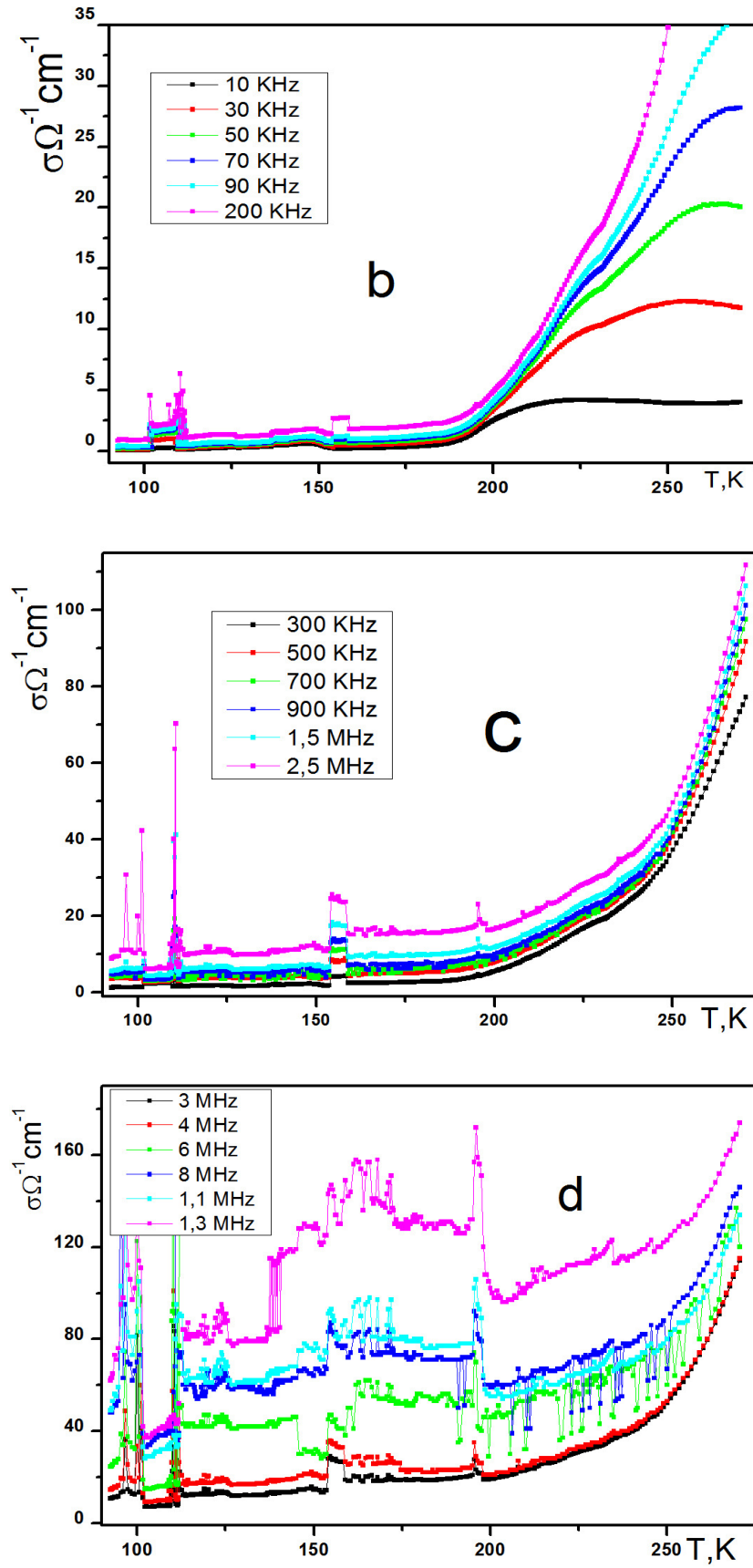
30Hz-13MHz frekans aralığında TlGaSe_2 kristallerinin iletkenlik (σ) ve dielektrik fonksiyonu (ϵ) gerçel kısmının sıcaklığı bağımlılığından elde edilen sonuçların ayrıntılı analiz sonucu, üç farklı sıcaklık bölgesine ayrıldı. Buna göre ilk bölge $T < 145\text{K}$, ikinci bölgede $145\text{K} < T < 190\text{K}$ ve üçüncü bölge $T > 190\text{K}$ dir. Bunun sebebiyse özetle dielektrik fonksiyonun gerçel kısmında ve iletkenlikte 145K - 190K sıcaklık aralığında bariz bir düşüş görülmesidir. Girişte belirtildiği gibi, bu sıcaklık aralığının özeliği, elektrik alanda kararsızlıklar gözlenen bir sıcaklık aralığı olmasıdır.

4.2.1.1 TlGaSe_2 Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki A.C. İletkenliği

Şekil 4.23 de TlGaSe_2 kristalinde katmanlara dik yöndeki iletkenliğinin farklı frekanslardaki sıcaklık grafikleri görülmektedir. Bu şekilde ilk dikkati çeken ise tıpkı TlInS_2 kristalinin dik yöndeki iletkenlik grafiklerindeki gibi klasik faz geçişine ait pikler görülmemesidir.

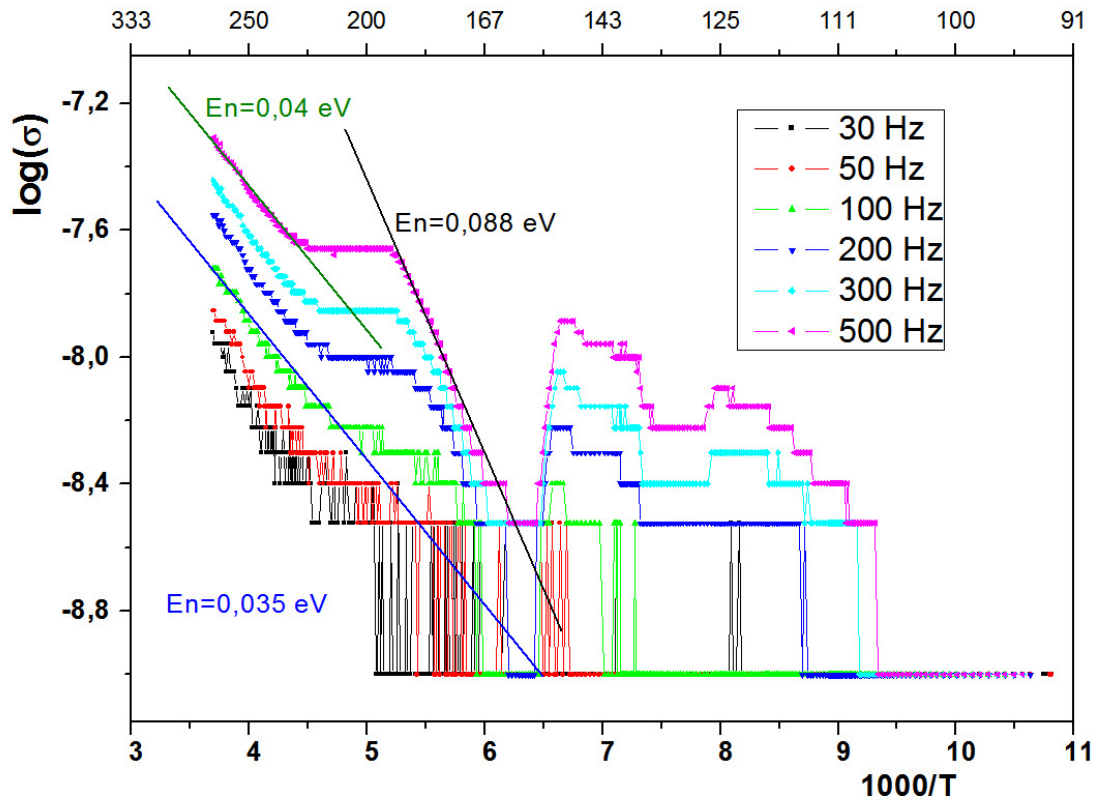
İkinci en önemli özellik ise 145K ile 190K arasında iletkenlikte bir çukurun oluşmasıdır. Gözlenen bu davranış elektronik alt sisteminde yer alan dengesiz bir faz geçişinden kaynaklandığı gösterilmiştir. [Seyidov,2009].





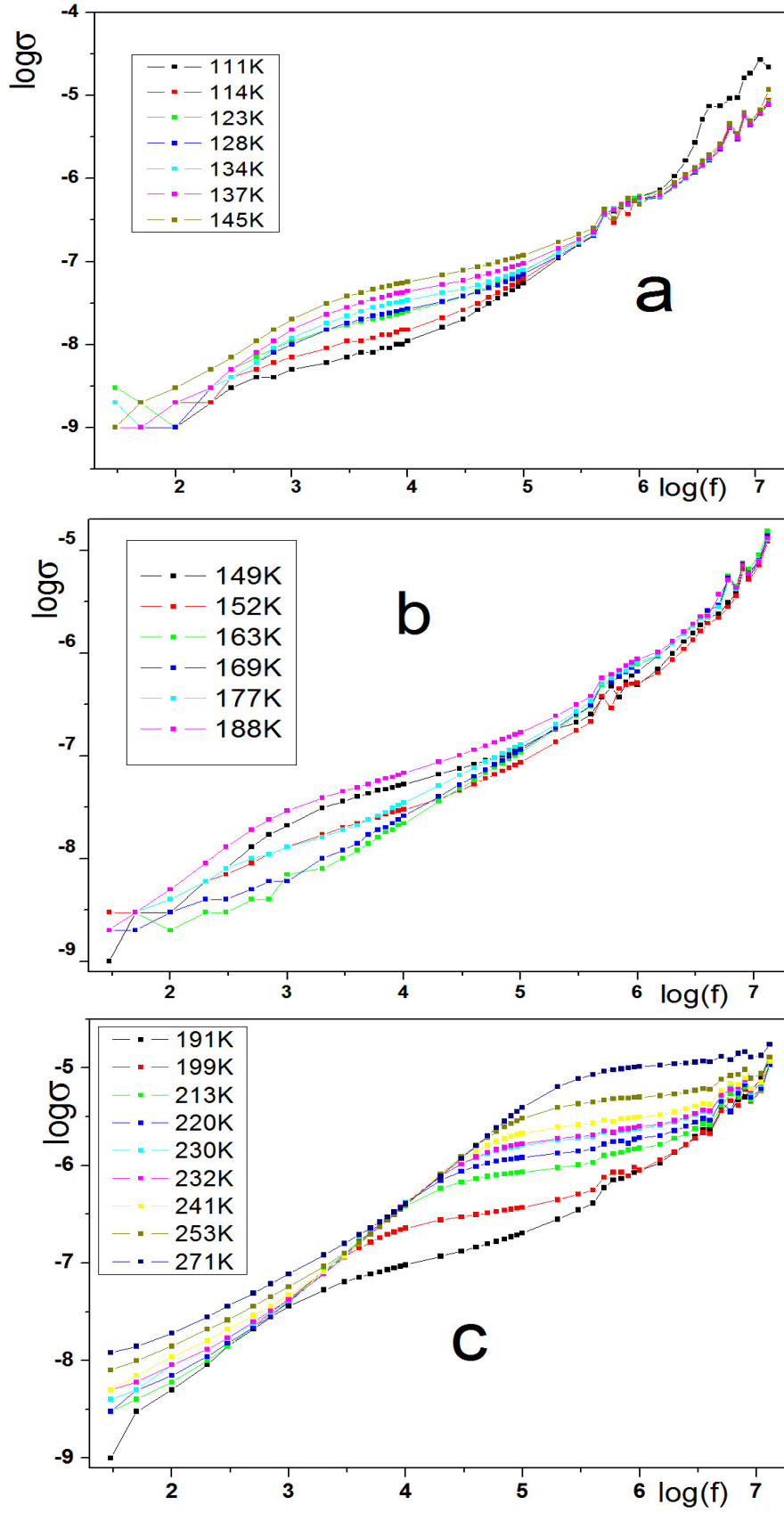
Şekil 4.23 TI GaSe₂ kristalinde farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.

Üçüncü olarak özellikle yüksek frekanslarda geniş bir sıcaklık aralığında sıcaklıktan bağımsız bir davranış sergilemektedir. Ayrıca 200K dan daha yüksek sıcaklıklarda iletkenliğin aniden artmasıdır buda daha önceki bölümde bahsedilen gibi serbest yüklerin katkı seviyesi-bant geçişini ortaya koyan bir davranıştır. Şekil 4.24 de TlGaSe₂ kristalinde düşük frekanslı katmanlara dik yöndeki $\sigma - 1000/T$ grafiği görülmektedir. 225K nin üzerindeki sıcaklıklarda klasik aktivasyon mekanizmasının oluşmaya başlaması görülmektedir ancak tüm frekanslardaki iletkenlik grafikleri tam olarak üst üste oturmamıştır. Buda normal aktivasyon mekanizmasına yakın bir davranışın 225K nin üzerindeki yüksek sıcaklıklarda gerçekleştiğini göstermektedir ve elde edilen aktivasyon enerjisi 0,04 eV civarındadır. Ayrıca şekil 4.23a da görülen 145-190K civarındaki çukur şeklindeki davranış burada daha belirgin olarak ortaya çıkmıştır.



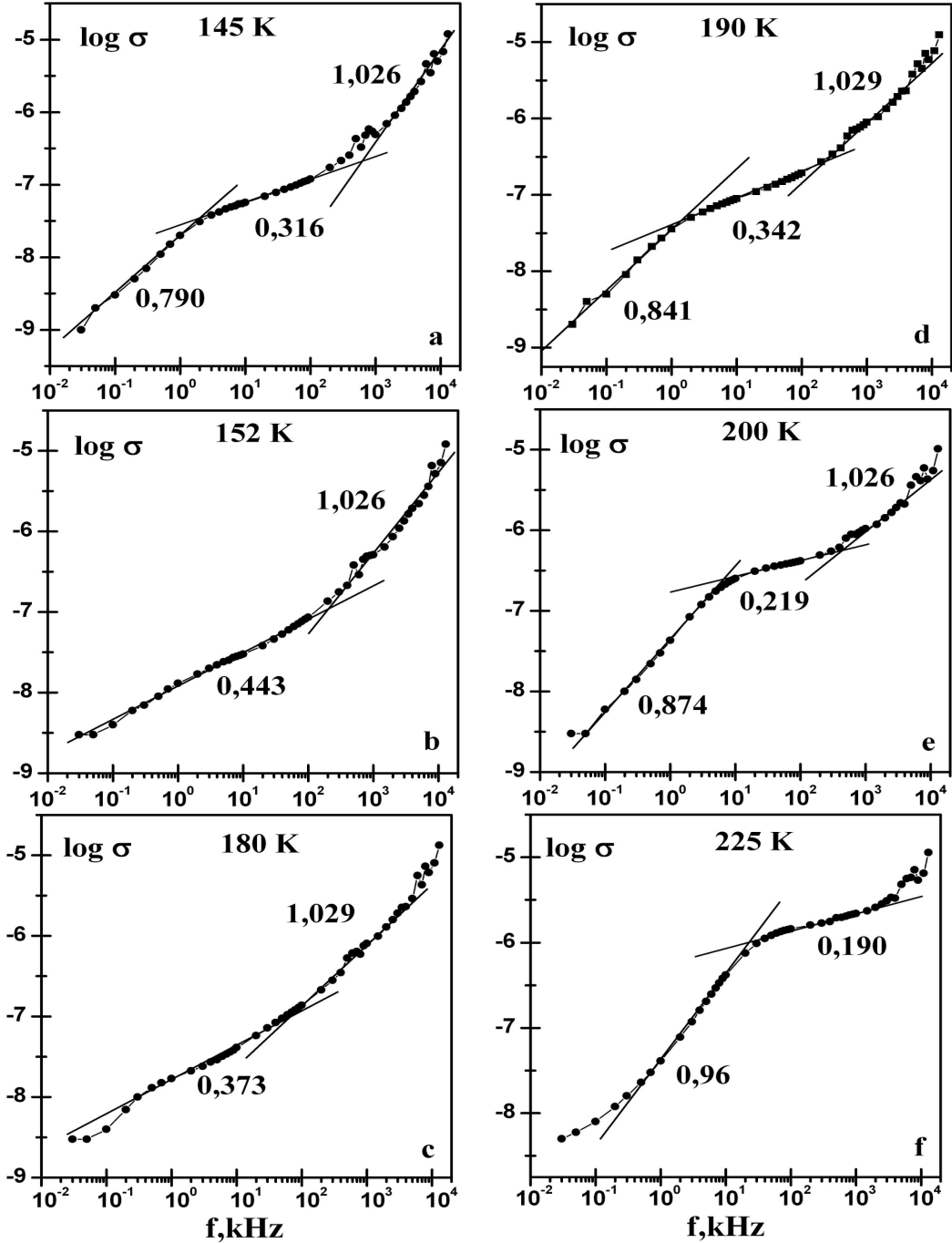
Şekil 4.24 TlGaSe₂ kristalinde düşük frekanslı katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.

Üçüncü bölge. $T > 190$ K sıcaklık bölgesinde katmanlara dik olarak ölçülen TlGaSe₂ kristallerinin iletkenliğinin frekans bağımlılığı Şekil 4.25c de toplu bir



Şekil 4.25 TlGaSe_2 kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(w)$ grafikleri.

şekilde gösterilirken Şekil 4.26 d,e,f de eğimlerdeki değişimi daha belirgin olarak ortaya konması açısından tek tek log-log ölçekte gösterilmiştir. Açıkça şekilden de görüldüğü gibi, iletkenlik Jonscher evrensel ölçeklendirme kanununa $\sigma \sim \omega^s$ uygun olarak değiştiği görülmektedir.



Şekil 4.26 TlGaSe_2 kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(\omega)$ grafikleri.

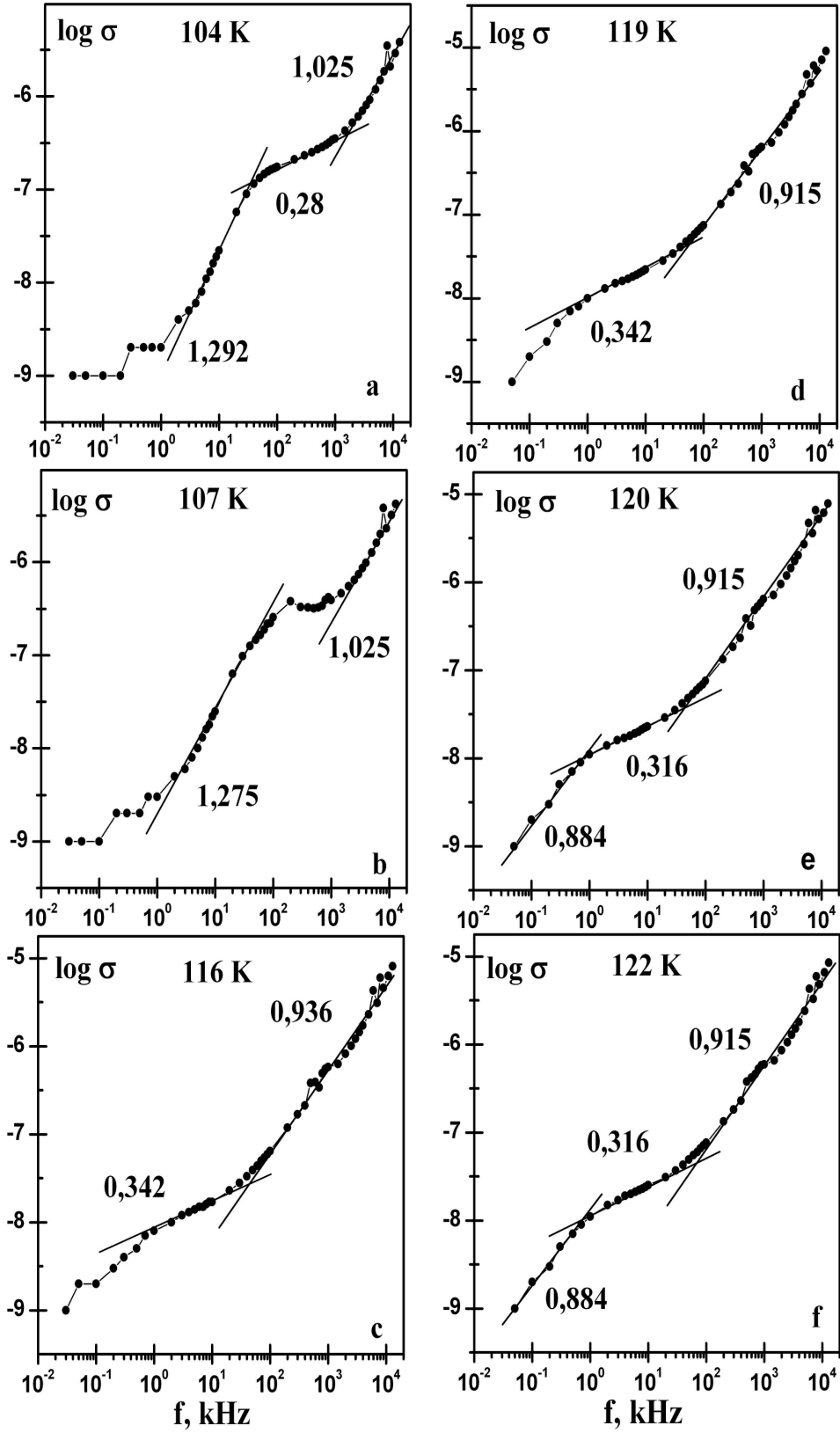
Bu durumu gösteren iki doğrusal kısmın eğimleri 0,84-1 aralığındadır. Bu iki bölümün arasındaki bir bölgede s değeri çok daha küçük bir değere sahip bir bölge görünür ($s=0,2$). Elektrik modülü değerinin maksimum olduğu frekanslarda s değeri 0.84 den 0,3 e değiştiği frekans bölgesinde ile aynı olduğu gözlenmektedir. Eğim değerinin 1-0,6 aralığında olan bölgeler iletkenliğin atlamalı mekanizmayla gerçekleştiğini göstermektedir. Daha düşük değerler sahip bölgeler ise serbest yüklerin davranışını ortaya koymaktadır ancak burada yüksek frekanslarda düşük eğimli bölgeleri oluşması oldukça ilginç bir durumdur.

Birinci bölge: $T < 145K$ sıcaklık bölgesinde ölçülen $TlGaSe_2$ kristallerinin iletkenliğinin frekans bağımlılığı üçüncü bölgede ölçülene çok benzerdir (Şekil 4.25a ve 4.27 d-f). s parametreleri değerleri bile birbirine çok yakın: sırasıyla 0.88 ve 0.34, farklılıklar, kristalin oransız faza girdiği 118K 'den düşük sıcaklıklarda gözlenir.

Şekil 4.27 'den görüldüğü gibi, σ nın ω bağımlılığı s parametresinin küçük değerlerindeki frekans bölgesi bir şekilde bozularak daha geniş olur ve s parametre değeri değiştiğinde daha düşük frekanslara kayar. Bu etki ısı ile durulma zamanın artmasından ileri gelir. Düşük sıcaklıklarda, $T < 108K$, kristal orantılı ferroelektrik faza girdiğinde σ nın ω bağımlılığı Şekil 4.27(a) ve (b) gösterildiği gibi tekrar $TlGaSe_2$ kristalinin normal karakterine döner. Aynı zamanda s parametresi nin değerleri biraz artarak 1 den büyük olur

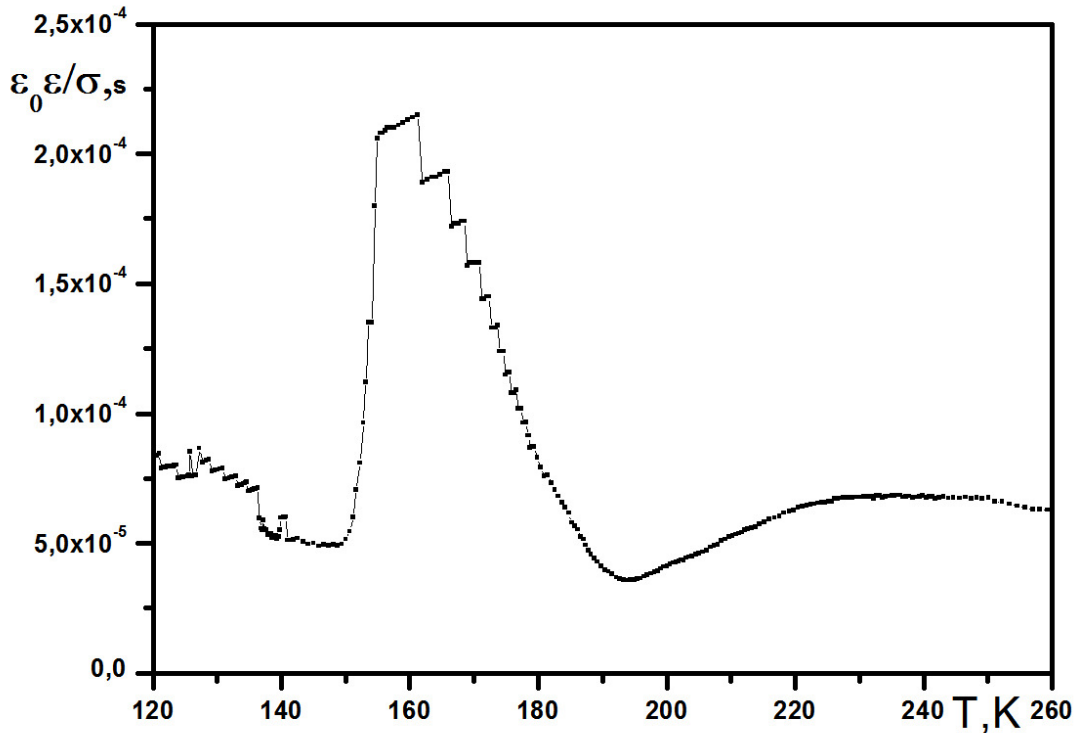
İkinci bölge: Bu en ilginç ikinci sıcaklık bölgesinde ($145K < T < 190K$) σ nın ω bağımlılığı önemli ölçüde değişir (Şekil 4.26 a,c). İkinci bölgede σ nın ω bağımlılığının şeklindeki değişim niteliksel olarak yukarıda açıklanan ilk bölgedeki oransız faz içindeki duruma benziyor fakat önceki çok daha belirgin bir karaktere sahiptir. Açıkça Şekil 4.39 da görüldüğü gibi, ikinci bölgede durulma zamanı değerleri büyük ölçüde artmıştır. Ayrıca, s 'in küçük değeri artarak 0.44 e yakın değerlere ulaşmaktadır. Yükün önemli bir bölümünü sık sık kontaklara yakın olan bariyerlerin yakınında birikmesi bir kuraldır. $TlGaSe_2$ kristallerde durumun böyle olmadığı, kristal içindeki bölgelerde biriktiği aşağıda ispatlanmaktadır.

Yük birikiminin ana mekanizması kristallerin içindeki homojen olmayan kısımlarda taşıyıcılarının yakalanmasıdır. Böyle bir yük durulması modeli, homojen



Şekil 4.27 TlGaSe_2 kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara dik yönde $\sigma(\omega)$ grafikleri.

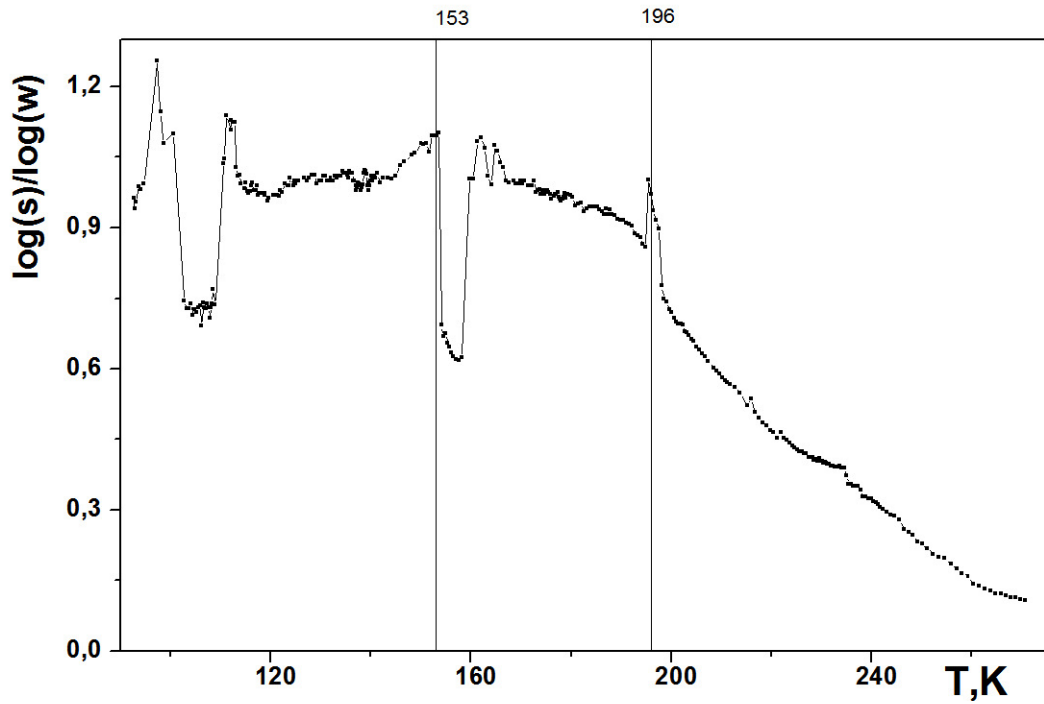
olmayan bir kristalin Maxwell-Wagner modeline benzetilmektedir [Jonscher,1983]. Bu modele göre, yük taşıyıcılar için durulma zamanını $\epsilon_0\epsilon/\sigma$ olarak verilen genel Maxwell durulma zamanıdır. Şekil 4.28 de $\epsilon_0\epsilon/\sigma$ in deneysel verilerden elde edilen değerlerin sıcaklık bağımlılıkları görülmektedir. İlgi çekici sıcaklık aralığı olan 145K-190K bölgesinde düşük frekanslarda $\epsilon_0\epsilon/\sigma$ sıcaklığa bağlı olarak anormal bir artış Şekil 4.28 de net olarak görülmektedir. 145K-190K sıcaklık aralığında $\epsilon_0\epsilon/\sigma$ Şekil 4.28 ve Şekil 4.39 ' deki durulma zamanının sıcaklığa bağımlılığı arasındaki benzerlik açıkça görülmektedir.



Şekil 4.28 TlGaSe₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki $\epsilon_0\epsilon/\sigma$ in 2KHz deki sıcaklık bağımlılığı.

Bu yüzden, basit bir Maxwell-Wigner modeli bile homojen olmayan bir kristal için gerçekçi sonuçlara götürdüğü söylenebilir. Şekil 4.26 ve 4.27 daki durum bir başka araştırmada, çok sıra dışı bir davranış olan homojen olmayan bir kristalin iletkenlik frekans bağımlılığına dayanan bu model yayınlanarak literatüre girmiştir. [Salehli et al,2007]

Şimdi üç bölümden oluşmakta olan kristalin yeterince yüksek sıcaklıklarda elde edilen σ nın ω bağımlılığını göz önüne alalım: Şekil 4.26 d-f de görüldüğü üzere, s parametresi değeri 0,8 den 0,3 e ve ardından 1'e tekrar yükselmektedir. Genellikle σ nın ω bağımlılığı ve s parametresinin küçük değerleri ile D.C kısmından başlar, sonra aniden yüksek frekanslarda değerleri yaklaşık 1 e kadar artar. Bu beklenen davranış aksine, 1 e yakın s in yüksek değerleri düşük frekanslarda ve D.C bölge civarları da yüksek frekanslarda elde edilmiştir. Bir yarı iletken de yeterince yüksek sıcaklıklarda düşük frekans bölgesinde s parametresi böyle yüksek değerleri sadece kristal içinde bazı yük birikim sürecine bağlı olarak alabilir. Bu durumda kristalin bir parçası 'normal' yarı iletken parçası ile seri bir kondansatör gibi davranır. s parametresinin yüksek değerlerinden küçük değerlere düşmesi ne karşılık gelen frekanslar, kondansatörün reaktif direncinin yarıiletken kısmın aktif direncinden çok daha küçük hale gelmesine karşılık gelir.



Şekil 4.29 TI GaSe₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki yüksek frekans bölgesindeki $s(T)$ grafiği.

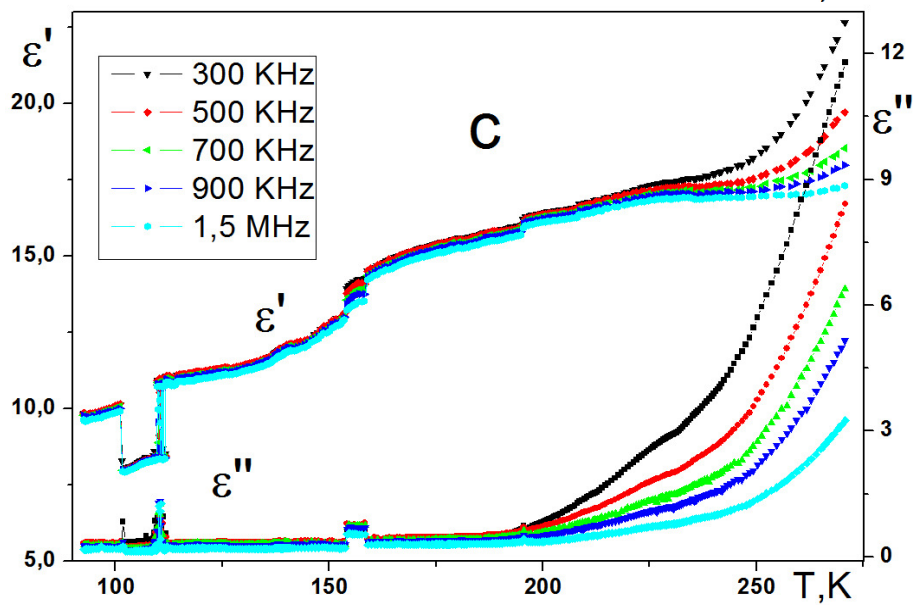
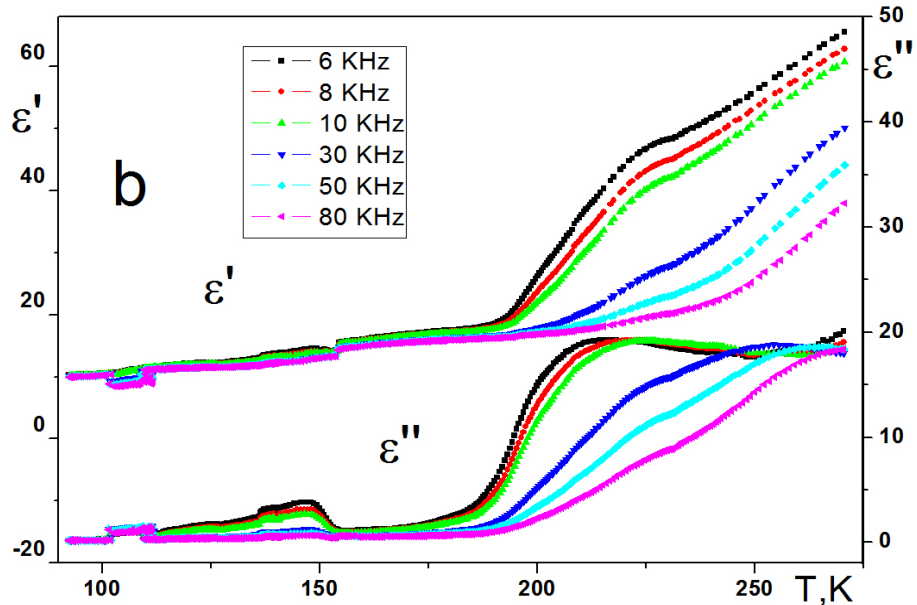
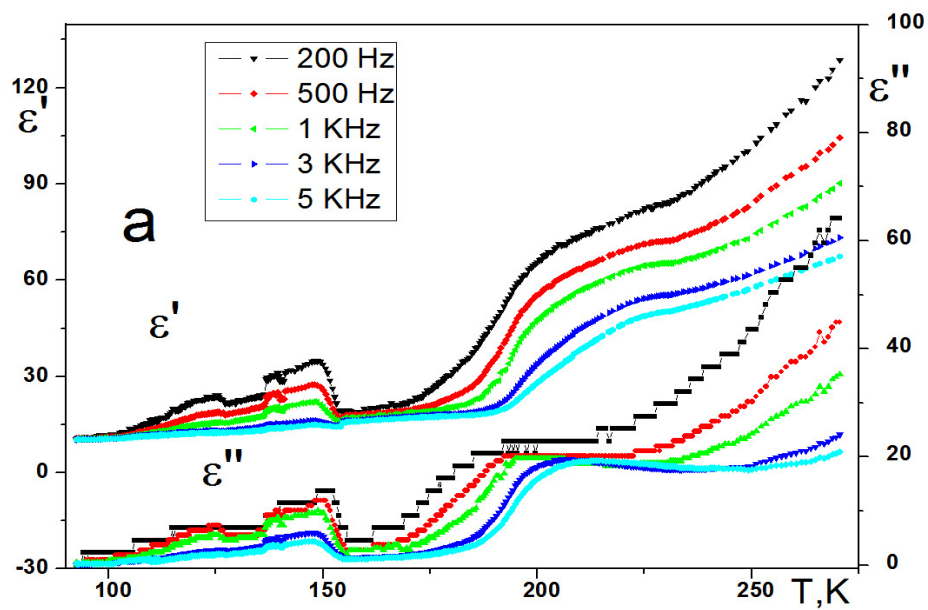
Şekil 4.29 da TI GaSe₂ kristalinde katmanlara dik yönde yüksek frekans bölgesindeki s parametresinin sıcaklık bağımlılığı görülmektedir. Frekansın artırılması genellikle birçok yalıtkanda, bazı yeni durulma mekanizmalarının

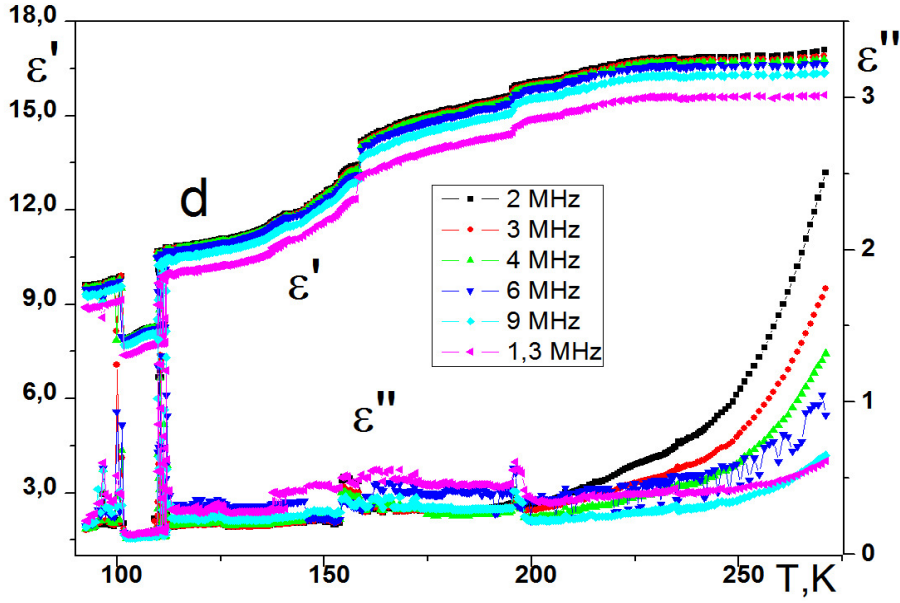
meydana gelmesiyle s in yüksek deęerleri vermesine sebep olmaktadır. Böylece, açıkça yukarıda verilen σ analizi, $TlGaSe_2$ kristalleri bazı homojen olmayan kısımlarında yüklerin biriktięi ve kapasitörler gibi davranış sergiledięi anlaşılmaktadır. Ayrıca s parametresinin sıcaklıkla davranışı genel olarak Jonscher evrensel ölçeklendirme kanununa uygun olarak deęiştii tespit edilmiştir. 200K den itibaren s deęerinin hızla azalması bu sıcaklıktan sonra hızla, katkı seviyesi bant geçiřlerinin de iletkenlik sürecine dâhil olamaya başladığını göstermektedir.

4.2.1.2 $TlGaSe_2$ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu

Şekil 4.30 de $TlGaSe_2$ kristalinde katmanlara dik yöndeki dielektrik geçirgenlięinin sanal ve gerçel kısımlarının farklı frekanslardaki sıcaklık baęımlılıęı görülmektedir. Bu şekilde de ilk dikkati çeken unsur ise tıpkı Şekil 4.23 deki iletkenlik grafiklerindeki gibi klasik faz geçiřine ait pikler görülmemesidir. İkinci önemli nokta ise yine tıpkı iletkenlik te olduęu gibi 145K-190K arasında ki sıcaklık bölgesinde bir her iki dielektrik geçirgenlikte de çukur şeklindeki davranışın görülmemesidir. Yukarıda iletkenlięin sıcaklık baęımlılıęında açıklanan tüm özelliklerin dielektrik fonksiyonun sıcaklık baęımlılıęında kendilerini ortaya koymaktadır. Bu sıcaklık bölgesinde gözlenen bu davranış elektronik alt sisteminde yer alan dengesiz bir faz geçiřinden kaynaklandığı gösterilmiştir. Böyle bir faz geçiři tipine "elektronik faz geçiři" denmiştir.

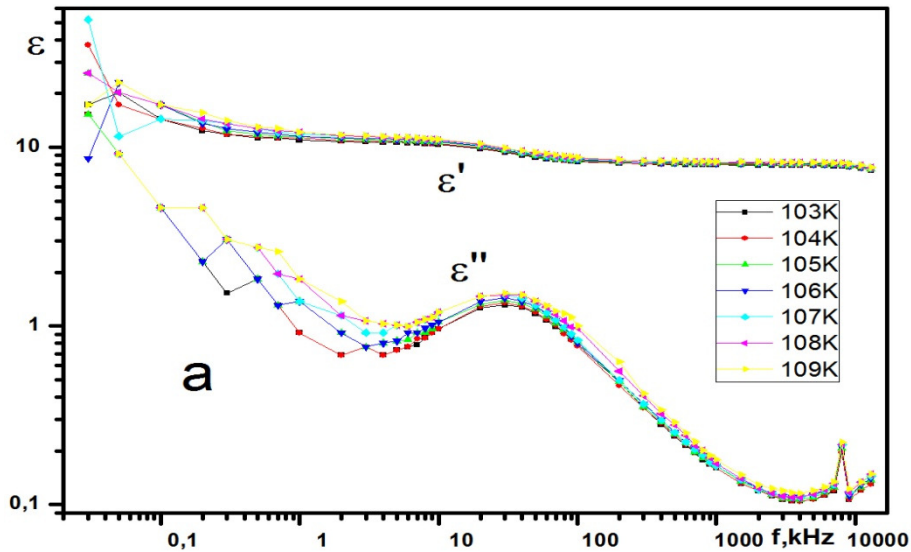
Üçüncü bölge: $T > 200K$ sıcaklık aralıęında $TlGaSe_2$ kristallerinin dielektrik fonksiyonun (ϵ') gerçel ve sanal (ϵ'') kısımlarının frekans baęımlılıęı Şekil 4.31 'de verilmiştir. Ölçümlerin katlar düzlemine dik olarak yapılmış olduęunu unutulmamalıdır. Dielektrik geçirgenlięin gerçel kısmı, 10-500 KHz frekans aralıęında iyice belirgin bir dağılım göstermekte ve aynı frekans bölgesinde sanal kısımda beklendięi gibi bir maksimumu meydana gelmektedir. Genellikle gözlendięi gibi, sanal kısmının maksimumu sıcaklıkla daha yüksek frekanslara kaymaktadır. Bu davranışın yansımaları argan diyagramların da dolayısıyla durulma zamanının sıcaklık fonksiyonunda görülmektedir.

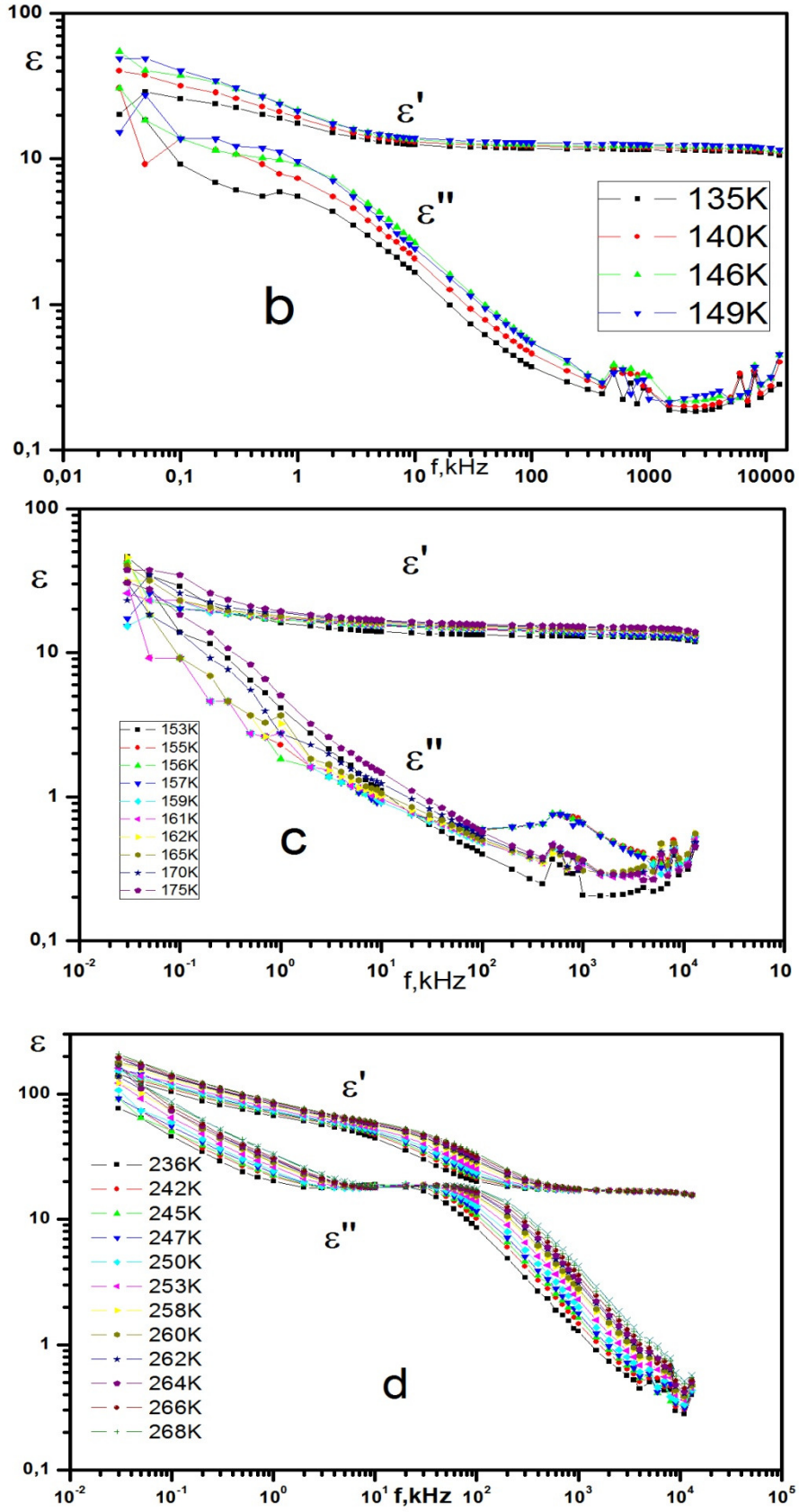




Şekil 4.30 TlGaSe₂ kristalinin farklı frekanslarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(T)$ ve $\epsilon''(T)$ grafikleri.

Birinci bölge: Bu bölge için üçüncü bölge ile ilgili belirtilenlerin hepsi Şekil 4.31a ve b deki sıcaklık bölgesi için de geçerlidir. Aynı zamanda daha ayrıntılı bir analiz yapacak olursak durulma zamanı geleneksel faz geçişine has davranışlar gösterirken oransız faz içindeki anormal davranışı Şekil 4.35 de gösterilmektedir. Ayrıca dielektrik geçirgenliğin sanal kısmında meydana gelen maksimum sıcaklık yükseldikçe düşük frekanslara kaymakta sonra görülememektedir.



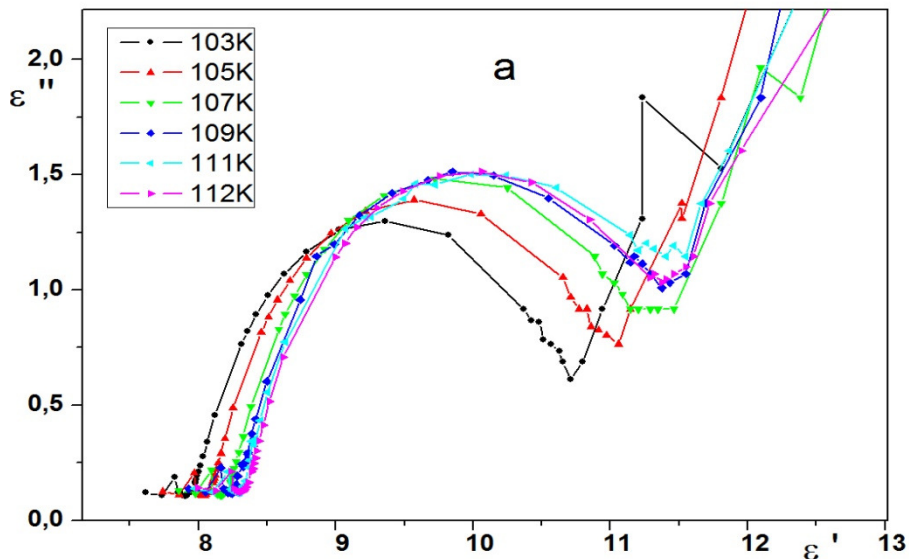


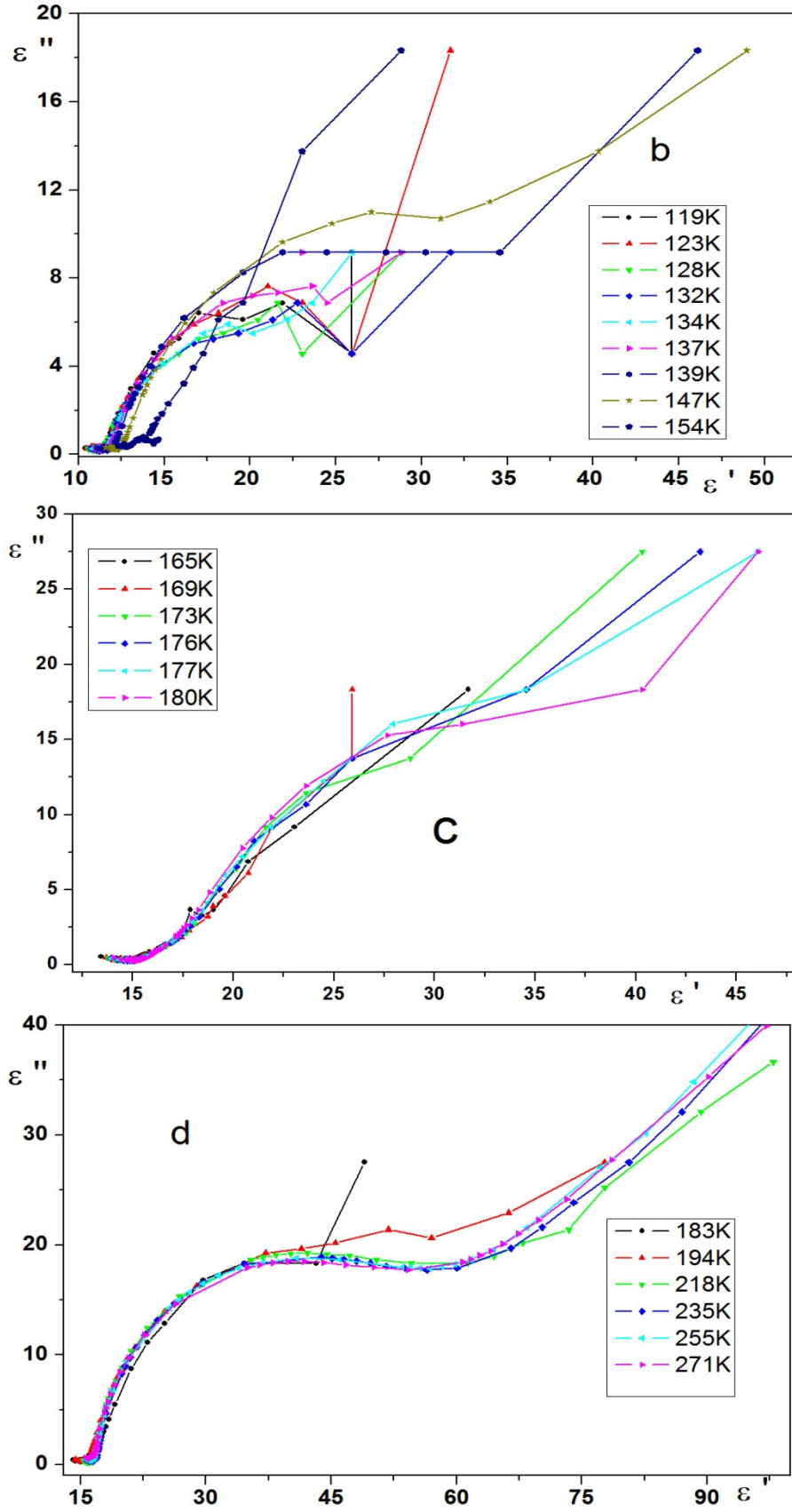
Şekil 4.31 TiGaSe_2 kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $\epsilon'(w)$ ve $\epsilon''(w)$ grafiği.

ikinci bölge: Bu sıcaklık bölgesinde ϵ' ve ϵ'' 'nın frekans bağımlılığı Şekil 4.31c de gösterilmiştir. Genellikle yarıiletkenlerde yüksek D.C iletkenlik nedeniyle düşük frekans bölgesinde dielektrik fonksiyonunun reel kısmı hiçbir dispersiyon beklenmediği kaydedilmiştir. Bu durumda dielektrik kayıplar, σ/ω terimi tarafından MHz frekans bölgesine kadar bastırılır. Yukarıda gösterildiği gibi, böyle yüksek öz direnç gösteren TlGaSe₂ kristallerinde katmanlara dik doğrultuda ölçümler yapıldığında durum böyle değildir. Şekiller 4.31 b,c ve d de açıkça görüldüğü gibi, iyice belirgin düşük frekans dağılımı geniş bir sıcaklık aralığında iyi çözümlenmiş dielektrik kayıp fonksiyonunun maksimumu gözlenmiştir. Durulmanın temel mekanizmasını bazı derin safsızlık merkezlerde tuzaklanan yüklerin serbest kalması nedeniyle Jonscher' ın sınıflamasına göre TlGaSe₂ kristalleri Debye benzeri durulma göstermektedir [Jonscher,1983], [Jonscher,1999]. Dielektrik fonksiyonunun reel kısmının küçük bir dağılımı kayıp pikinin frekansı $1/\tau$ tuzaklardan elektronun emisyonuna karşılık gelen durumu görülmektedir. Burada τ durulma zamanıdır.

4.2.1.3 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Cole-Cole Diyagramı

Şekil 4.32 de TlGaSe₂ kristalinde katmanlara dik yöndeki farklı sıcaklıklardaki Cole-Cole diyagramları görülmektedir. Şekilde görüldüğü gibi diyagramlar çeyrek çember düzenindedir. Tüm sıcaklıklarda düşük frekanslı (D.C.) ikinci bir bölgenin uzantısı görülmektedir.



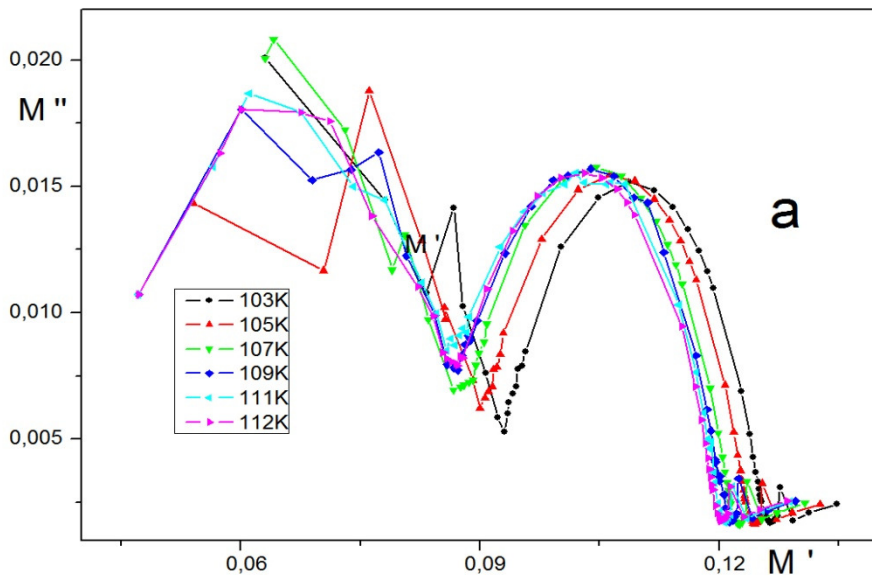


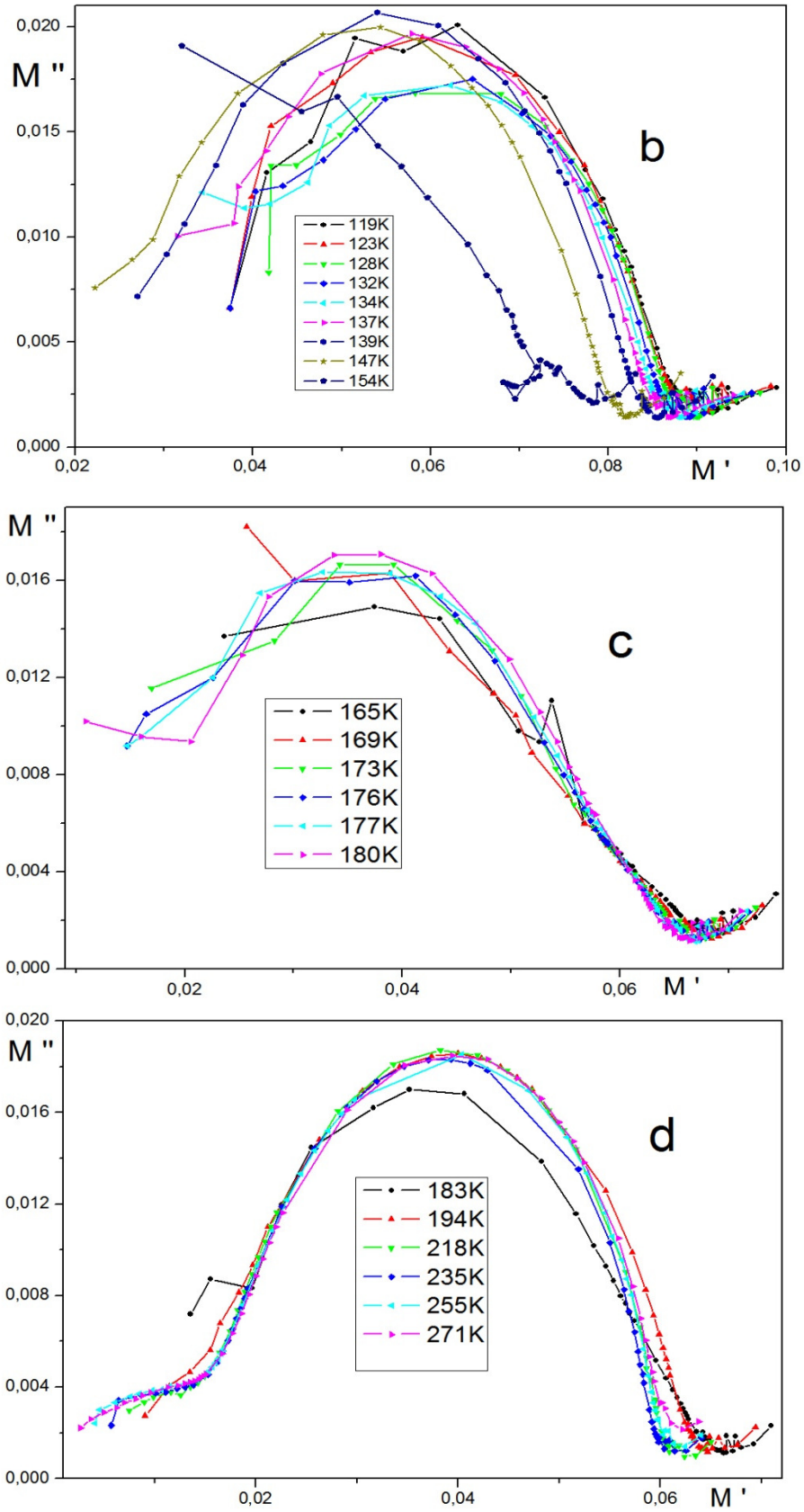
Şekil 4.32 TlGaSe_2 kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki Cole-Cole diyagramları.

Buda Kristalimizin yarıiletken olmasından dolayı serbest yüklerin fazla oluşundan kaynaklanmaktadır. Bununla birlikte serbest yüklerin hareketinin kristaldeki kusurlardan dolayı sınırlanmakta ve D.C. kısmının yüksek frekanslı bölgenin frekansa bağlılığının fazla olmasından dolayı yüksek frekanslı bölgenin düşük frekanslı kısmının davranışını gölgelemesinden kaynaklanmaktadır. Özellikle 103K-112K sıcaklık bölgesindeki davranış bu noktanın birbirinden ayrıştığı bir durum olarak göze çarpmaktadır. Ayrıca bu diyagramlar her ne kadar çeyrek çembere otursa da bu diyagramlardan sağlıklı bir durulma zamanı grafiği elde edilememektedir bu yüzden argan diyagramlarının kurmak gerekmektedir.

4.2.1.4 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları

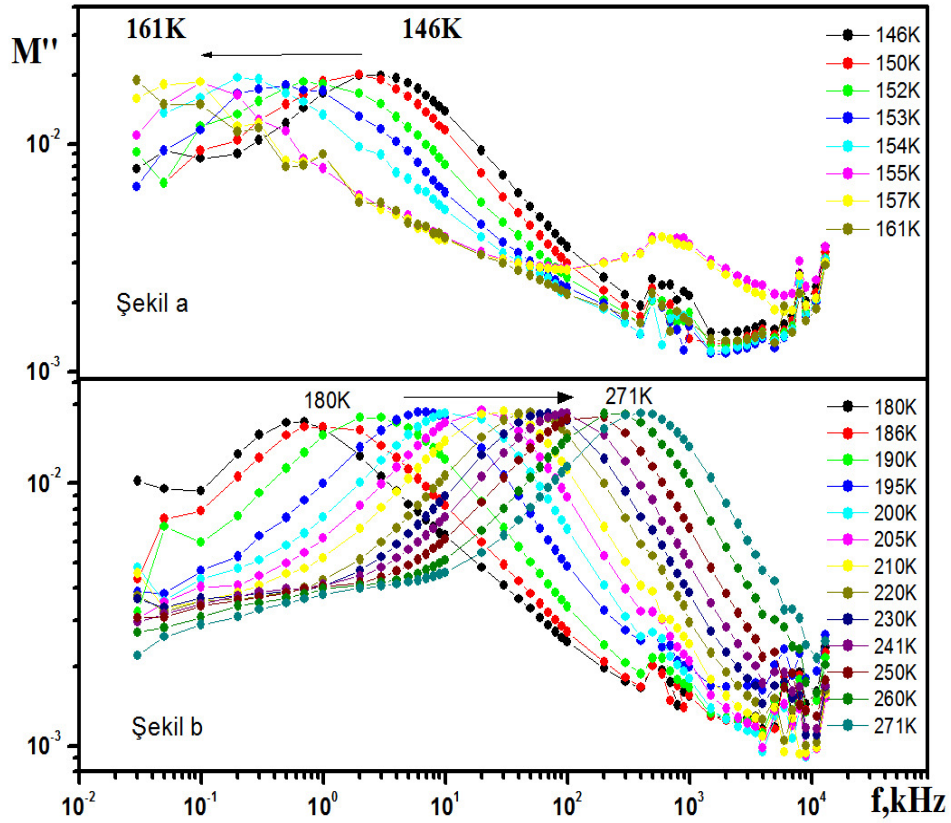
Durulma zamanının frekansa bağımlılığının sıcaklıkla olan davranışını daha net bir şekilde elde etmek için elektrik modülü, farklı sıcaklıklarda hesaplanmıştır (Şekil 4.33). Elektrik modülü formalizmi yarıiletkenlerin iletkenlik durulmalarının analizi için başarıyla kullanılmıştır [Kremer F. and Schonhals A,2003] ve durulma süreçlerinde, iletkenliğin rolünü ortaya koyan çok güçlü bir araçtır. Durulma zamanının sıcaklığa bağlılığını, incelenen tüm sıcaklıklarda elde edilmesine olanak sağlayan belirgin maksimumlar ortaya çıktığı Şekil 4.33 ve 4.34 de görülmektedir.





Şekil 4.33 TlGaSe₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki elektrik modülünün argand diyagramları.

Elektrik modülünün maksimumunun sıcaklığa bağımlılığı birinci ve üçüncü bölgenin aksine sıcaklık artışı ile düşük frekans bölgesine doğru bariz bir kayma Şekil 4.34b görülmektedir. Bazı sıcaklık bölgesinde, 155K-180K, M'' 'in maksimum değeri belirlemek imkânsız hale gelmektedir. Bu tür davranışın bir sonucu olarak,



Şekil 4.34 TlGaSe₂ kristalinde farklı sıcaklıklarda katmanlara dik yöndeki $M''(\omega)$ grafikleri.

durulma zamanının sıcaklık bağımlılığı 150K-180K sıcaklık bölgesinde ve çevresinde anormal bir artış göstermektedir (Şekil 4.35).

Elektrik modülünün maksimumundan geçmesi ve 225K dan yüksek sıcaklıklarda klasik aktivasyona ait ibarelerin görülmesi ve ayrıca incelenen frekans aralığında serbest yüklerin aktif olarak rol oynamasından dolayı iletkenlik mekanizmasının bir atlama mekanizması olduğu anlaşılmaktadır. Bu şekillerin ortak noktası maksimum

noktasına göre simetrik olmamasıdır. Buda aslında bu sıcaklık aralığında en az iki iletkenlik mekanizmasının bir ara olduğu durumu sergilemektedir. Bu mekanizmalarda yukarıda bahsettiğimiz sebeplerden dolayı atlamalı ve katkı-band geçişi mekanizmalarıdır. Yüksek sıcaklıklara ve düşük sıcaklıklara gidildikçe çemberlerin daha simetrik olması bu iki mekanizmanın giderek bir birinden ayrıştığını göstergesidir.

4.2.1.5 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Dik Yöndeki Durulma Zamanı

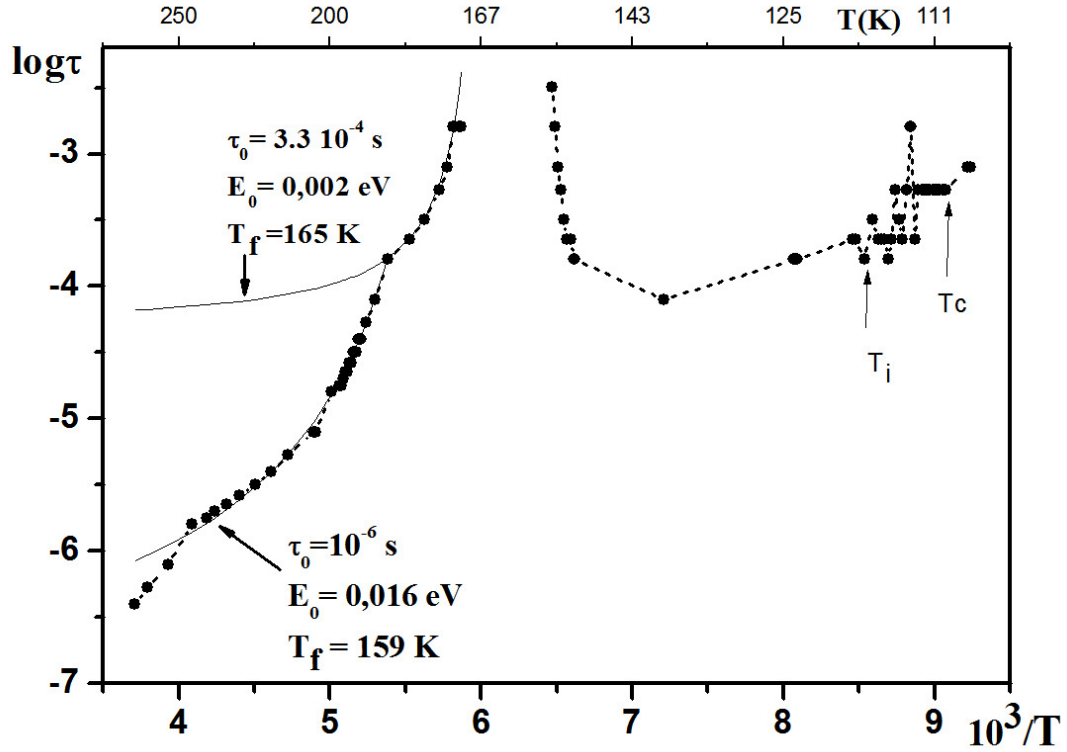
Yukarıda bahsedilen TlGaSe₂ kristallerinin durulma zamanının genel sıcaklık bağımlılığının tüm ölçümlerin özeti Şekil 4.35 de gösterilmiştir. Bu bağımlılığın ana özelliği iki sıcaklık bölgesinde durulma zamanı standart dışı bir davranıştır: İlk bölgede 108K-118K kristallerinin oransız fazlı bölgesi, ikinci bölgede ise, 145K-190K, bilinen faz geçiş sıcaklıklarından uzaktır. Aşağıda elde edilen sonuçlar ayrıntılı bir analizini verecektir.

Şimdi, çözülmesi gereken temel sorun durulma zamanı sıcaklık bağımlılığıdır. Homojen olmayan bir kristalin ortaya konan modeller çerçevesinde durulma zamanının beklenen davranışı; durulma zamanının sıcaklığa bağlılığının bir üstel kanununa uyan ve taşıyıcıları yakalayan safsızlıkların aktivasyon enerjisi E olan Debye modelidir.

TlGaSe₂ kristallerde durulma zamanı davranışının yüksek sıcaklık bölgesinde bile beklenen davranışı sergilemediğini göstermek için Şekil 4.35 de $\tau(T)$ bağımlılığını Arrhenius koordinatlarında verilmiştir. Aynı zamanda τ nun sıcaklık bağımlılığını Vogel-Fulcher bağıntısına uydurulması yardımı ile elde edilmiştir [Jonscher, 1999.], [Vogel, 1921], [Fulcher, 1925].

Burada T_f genellikle camsı sistemlerinin özelliklerini açıklayan 'donma sıcaklığı' dir. Uydurma parametrelerin değerleri Şekil 4.35 de gösterilmiştir. $\epsilon_0\epsilon / \sigma$ grafiğinde maksimum değer görüldüğü sıcaklığa yakın iki T_f dondurma sıcaklığının olması ilginçtir. Bu nedenle açıklanan analiz, bazı cam tipi faz geçişinin 160K yakın

'dondurma' sıcaklık ile TlGaSe₂ kristalleri yer aldığı sonucunu doğurur ve böylece bu kristallerin çeşitli araştırmalarda gözlenmiş fiziksel parametrelerin pek çok özellikleri bu faz geçişi nedeniyle olabilir.



Şekil 4.35 TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara dik yöndeki $\tau(T)$ grafiği.

Bu durum yarı iletken GaAs kristallerinin dielektrik özelliklerini araştırmasında ifade edilen durulma zamanı ölçüm sonucunda [Jonscher et al ,1992] belirli bir sıcaklık aralığındaki bazı faz geçiş varlığının açıkça gösterdiği duruma benzemektedir. Öte yandan GaAs kristallerinin yapısal faz geçişinin bu sıcaklık aralığında olmadığı da bilinmektedir. [Jonscher et al ,1992] Yazarlar, bunu 'elektronik faz geçişleri', olarak adlandırmış ancak böyle bir faz geçişi ayrıntılı bir açıklama bildirilmemiştir.

Kısaca giriş kısmında değinilen son araştırmalarda var olan TlGaSe₂ kristalleri kararsız alanları ele alındığında durulma zamanının anormal davranışlarının gözlemlendiği tam da aynı sıcaklık bölgesinde, 145K-190K, elektrik alan kararsızlıkları tespit edilmiştir[Seyidov,2006]. Şimdi kontakların olası etkilerini kontrol etmek için kristal yüzeyine temas etmeden yapılan özel deneylere dikkat edelim[Seyidov,2007]. Elde edilen sonuçlar kesinlikle elektrik alan kararsızlıklarının temas bölgesine bağlı

olmadığını ve alan kararsızlıklarını meydana getiren aktif bölgelerin kristalleri içinde olduğunu göstermiştir.

Gözlenen olayları açıklamak için yarıiletkenlerde alan kararsızlıklar dikkate alınarak doğrusal ve doğrusal olmayan elektrik birimleri gibi elektrik şeması serisi içeren eşdeğer basit bir model önerildi [Boer,1965], [Boer,1969]. Bu model çerçevesinde alan kararsızlıkları belirli sıcaklık aralığında doğrusal ve doğrusal olmayan kısımlar tarafından belirlenen S-tipi I-V karakteristiğine özgü direncin sıcaklığa bağımlılığı elde edilebilir. Şimdi yukarıda tartışılan 'normal' yarı iletken kısmın doğrusal kısım olduğu ve yüklerin birikimine yol açan kısmın doğrusal olmayan kısım olduğu önerilebilir. Çünkü elektrik alan kararsızlıkları sık sık elektrik alan bölgelerini oluşmasına yol açar [Neumann ,2001],[Willing and Maan ,1994],[Piazza et al ,1997],[Kahn et al,1991]. 145K-190K sıcaklık aralığında yük birikim süreci elektrik alanı bölge oluşum sürecinden başka bir şey olmadığı ortaya çıkıyor. Bu durumda kapasitans azalacak, direnç artacak ve durulma zamanı deneye göre maksimum değere sahip olacaktır.

Yaygın olarak, yukarıda tanımlanan elektrik alan kararsızlıkları gibi kararsız elektronik süreçler termodinamik açıdan kararlı faz geçişlerine çok yakın olduğu tartışılmıştır [Scholl,2001],[Scholl,1997],[Aoki,2001]. Yani, TlGaSe₂ kristalleri gözlenen elektriksel alan kararsızlıkları 'elektronik faz geçişleri' olarak kendilerini belli etmesi gerçekçi görünüyor. 145K-190K sıcaklık aralığında TlGaSe₂ kristallerin çeşitli fiziksel parametrelerin anormal davranışı böylece ortaya çıkıyor.

4.2.2 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yönde Dielektrik spektroskopisi Yöntemiyle İncelenmesi

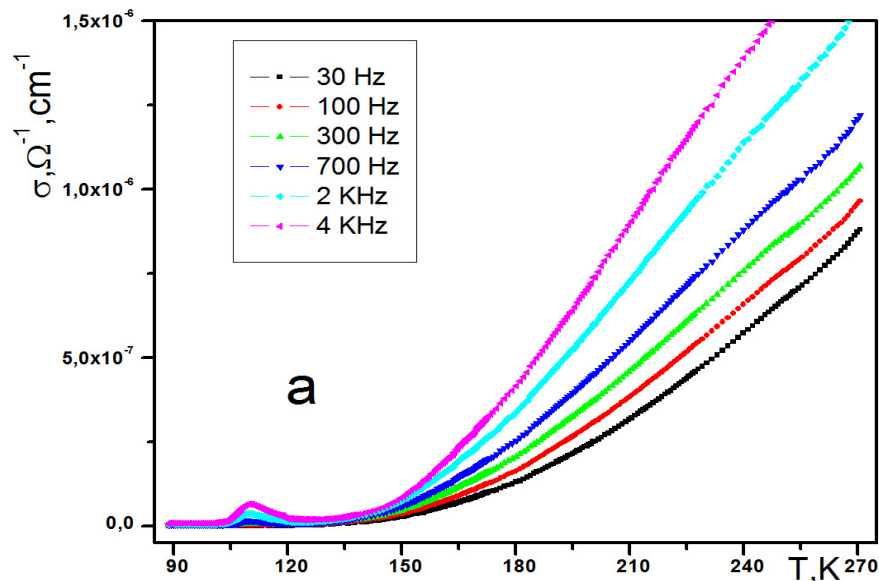
TlGaSe₂ kristallerinin A.C iletkenliğinin (σ) ve dielektrik fonksiyonu gerçek kısmının (ϵ') sıcaklığı bağımlılığı çeşitli frekanslarda katmanlara paralel olarak incelenmiştir. Beklenen sıcaklık bölgesine yakın 110K daki "bilinen" faz geçişi noktasına, belirgin anomaliler her iki parametrenin bağımlılığının ana özelliği kolayca görülmektedir. Dik yöndeki ϵ' , ϵ'' ve σ da 145K-190K sıcaklık aralığında

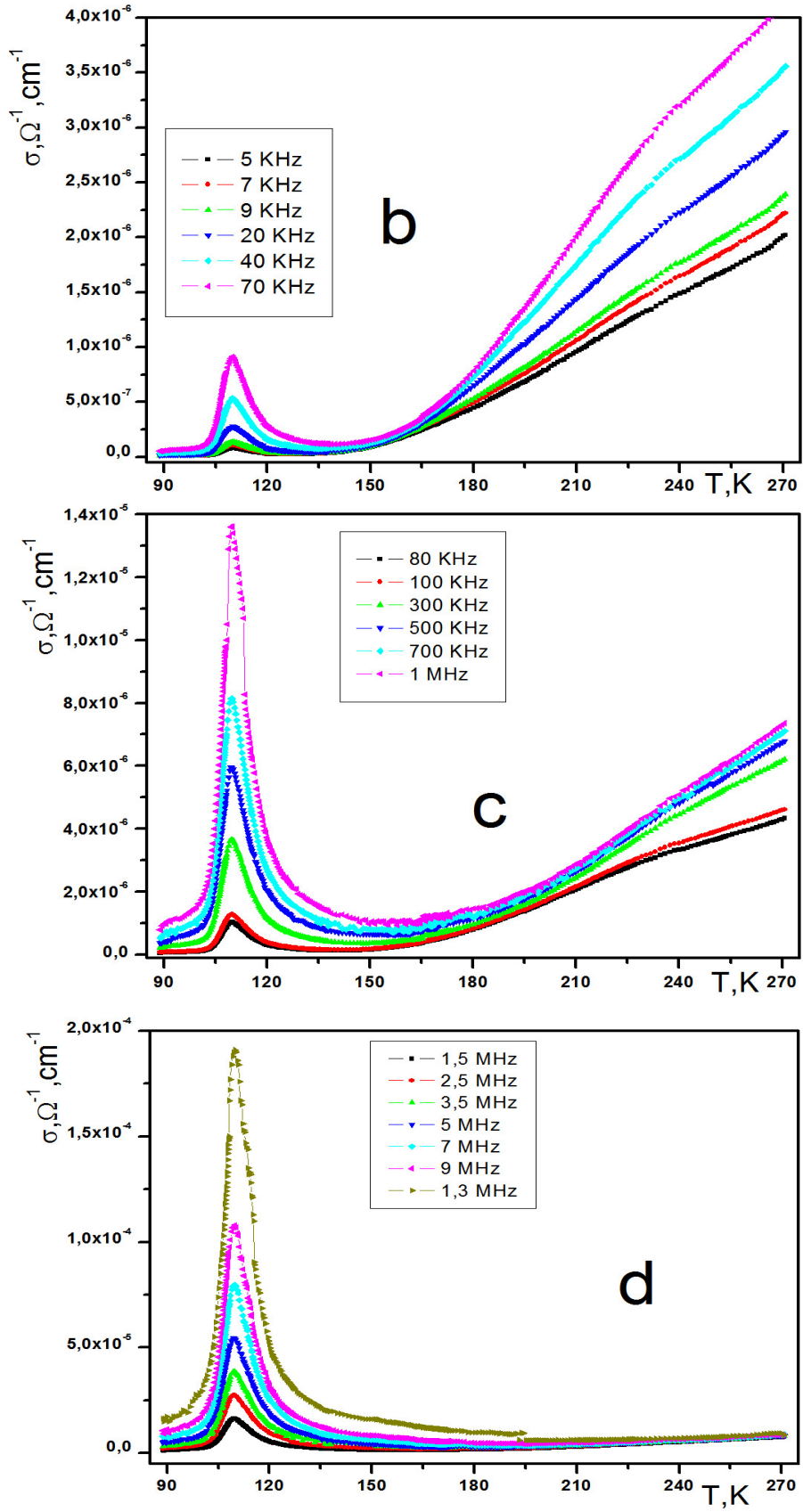
belirgin olarak kaydedilen düşüş ile ilgili bir anomaliye paralel yönde rastlanmamıştır. [Salehli et al,2007]

4.2.2.1 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki A.C İletkenliği

Katmanlara paralel olarak ölçülen TlGaSe₂ kristallerin elektriksel iletkenliğinin sıcaklık bağımlılığı Şekil 4.36 da görülmektedir. Şekilde ilk dikkati çeken nokta bilinen faz geçişlerine ait davranışın belirgin bir şekilde ortaya çıkmasıdır. Bir diğer nokta ise Şekil 4.36 a ve b de ki frekans bölgesinde yüksek sıcaklıklarda bir artışın gözlenmesidir. Yine burada da serbest yüklerin katkı-bant geçişlerinin etkilerin görmekteyiz. Bu şekillerin başka bir ortak noktası ise katmanlara dik yöndeki 145-190K sıcaklık aralığındaki anormal davranışa ait bir izin görülmemesidir. Bunun sebebi yine bu kristallerde yapısal faz geçişlerinin katmanlara paralel yönde gerçekleşmesinden kaynaklanmaktadır.

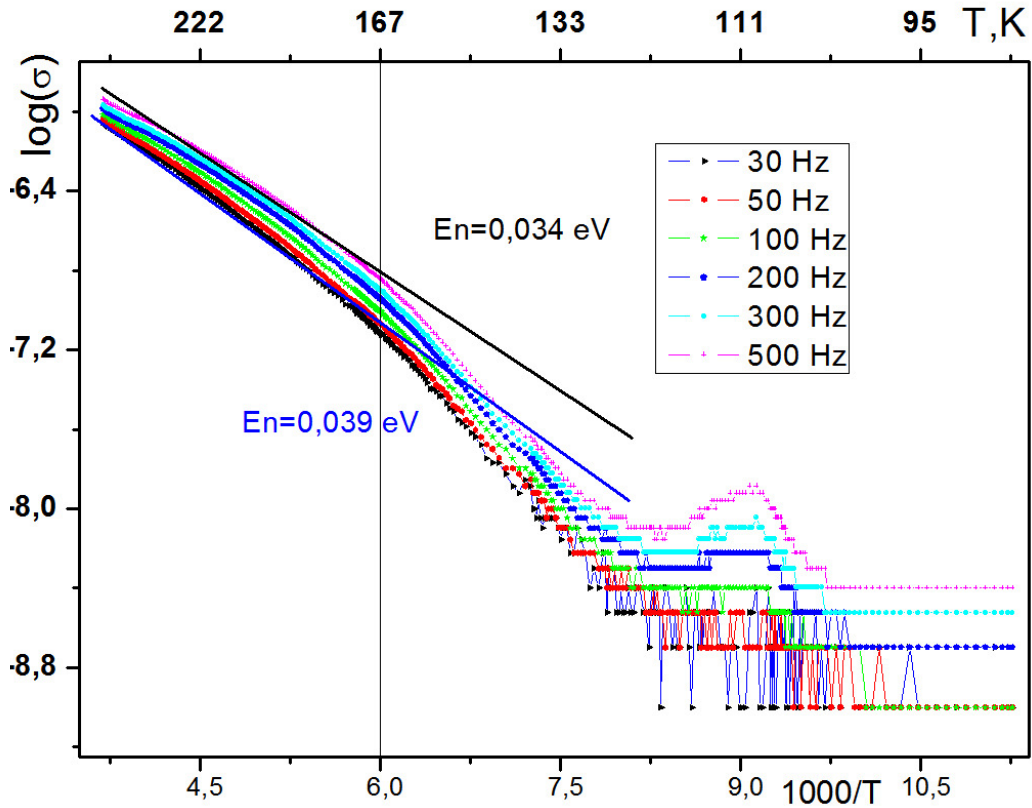
Şekil 4.37 TlGaSe₂ kristalinde katmanlara paralel yönde düşük frekanslı iletkenliğin sıcaklık bağımlılığı görülmektedir. Standart aktivasyondan sapma sıcaklığı olarak 167K görülmektedir. Bu sıcaklığın üstündeki sıcaklıklarda iletkenlik aktivasyon mekanizması ile gerçekleşirken bu sıcaklığın altındaki sıcaklıklarda atlama mekanizması daha baskın olamaya başlamaktadır. Bunun bir diğer yansıması da s parametresinin sıcaklığa bağımlılığında görülmektedir.





Şekil 4.36 TI GaSe₂ kristallerinin çeşitli frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\sigma(T)$ grafikleri.

Katmanlara paralel olarak ölçülen TlGaSe_2 kristallerin A.C. elektriksel iletkenliğinin Log-log ölçekli skalada farklı sıcaklıklarda frekans bağımlılıkları Şekil 4.38 da gösterilmiştir. Görüldüğü gibi, iletkenlik spektrumunun davranışı Jonscher evrensel üs kanunu temelinde açıklanabilir bir davranış sergilemektedir. 150K dan düşük sıcaklıklarda evrensel kanun atlamalı iletkenlik mekanizmasına hâkim olduğunda s parametresi 0.8-1 aralığında değiştiği gözlemlendi. Yüksek sıcaklıklarda kritik sıcaklık bölgesinde $140\text{K} < T < 190\text{K}$ de dâhil olmak üzere D.C kısmı baskın olmaya başlar. Katanlara paralel yöndeki açıklanan davranışı aksine katmanlara dik yönde ölçülen $\sigma(\omega)$ nın ω bağımlılığı kritik sıcaklık bölgesinde önemli ölçüde değiştirmektedir [Salehli et al,2007].



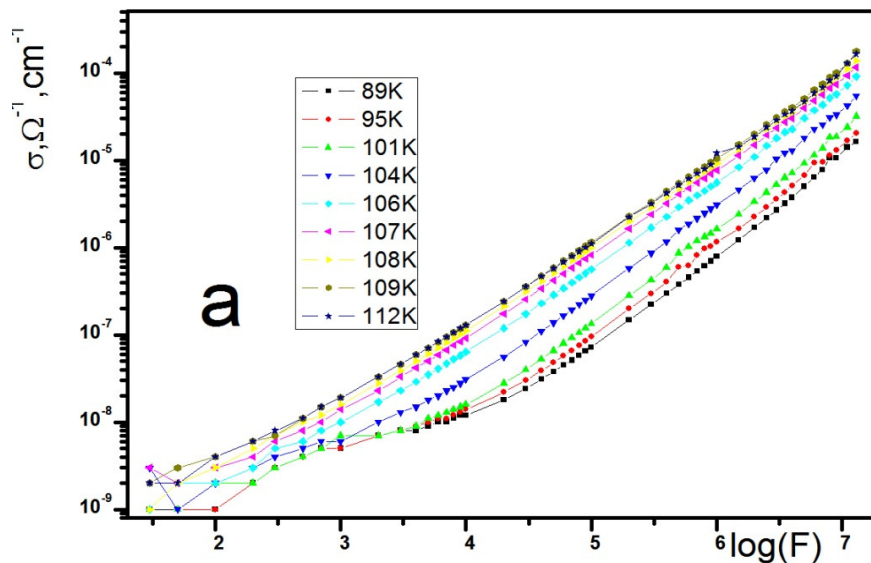
Şekil 4.37 TlGaSe_2 kristalinde düşük frekanslı katmanlara dik yöndeki $\log(\sigma) - 1000/T$ grafiği.

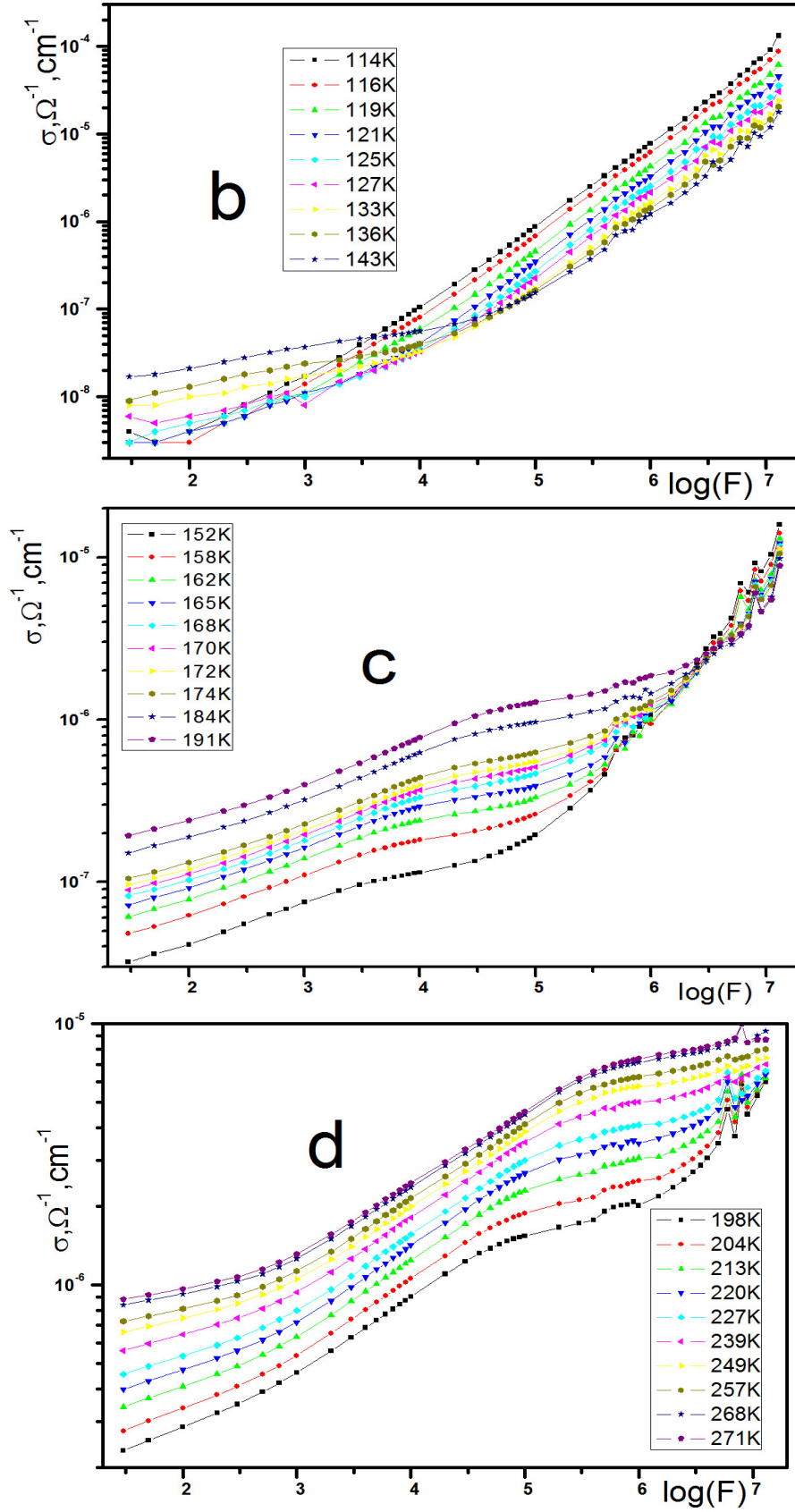
Katmanlara dik ve paralel yöndeki davranışların karşılaştırmak amacıyla, ilgilenilen kritik sıcaklık bölgesinde katmanlara paralel yönde yarı iletken malzemelere has, bilinen standart davranış ϵ ve σ nın sergilediği gösterildi

[Jonscher,1999]. Buna karşılık, katmanlara dik yönde ölçülen TlGaSe₂ kristallerin ϵ ve σ parametreleri, kritik sıcaklık içinde 145K-190 K saçma davranış sergilediğinden yukarıda bahsedilmiştir.

Bir diğer dikkat çeken nokta 150K dan daha yüksek sıcaklıklarda yüksek frekanslı bölgenin sıcaklıktan bağımsız davranarak üst üste çakışmasıdır. Bir diğer husus şekilde görüldüğü gibi 120K ya kadar tüm frekanslarda spektrum düz bir hat halindedir. Bu sıcaklıktan sonra frekansa bağlılık gösteren bir kısım ikinci bir eğim düşük frekans bölgesinde ortaya çıkmakta ve git gide tüm sıcaklıklarda bu eğim hâkim olmaktadır. Bu davranışın sebebi düşük sıcaklıklarda serbest yük sayısı oldukça az ve bu yüzden atlama mekanizması yüksek eğimli davranışıyla etkisini gösterebilmektedir. Sıcaklık arttıkça serbest yük sayısı artmakta, serbest yükler ise bu frekans bölgesinde frekansa bağlılığı oldukça zayıftır bu yüzden düşük eğimli kısım sıcaklığın artmasıyla daha baskın olmaktadır. Buradaki frekansa zayıf bağlılığın yansımasını, elektrik modülünün argan diyagramlarında maksimumdan geçişi olarak ortaya çıkmaktadır. Bunun sonucunda da burada gerçekleşen iletkenlik mekanizmasına ait durulma zamanları elde edilebilmektedir.

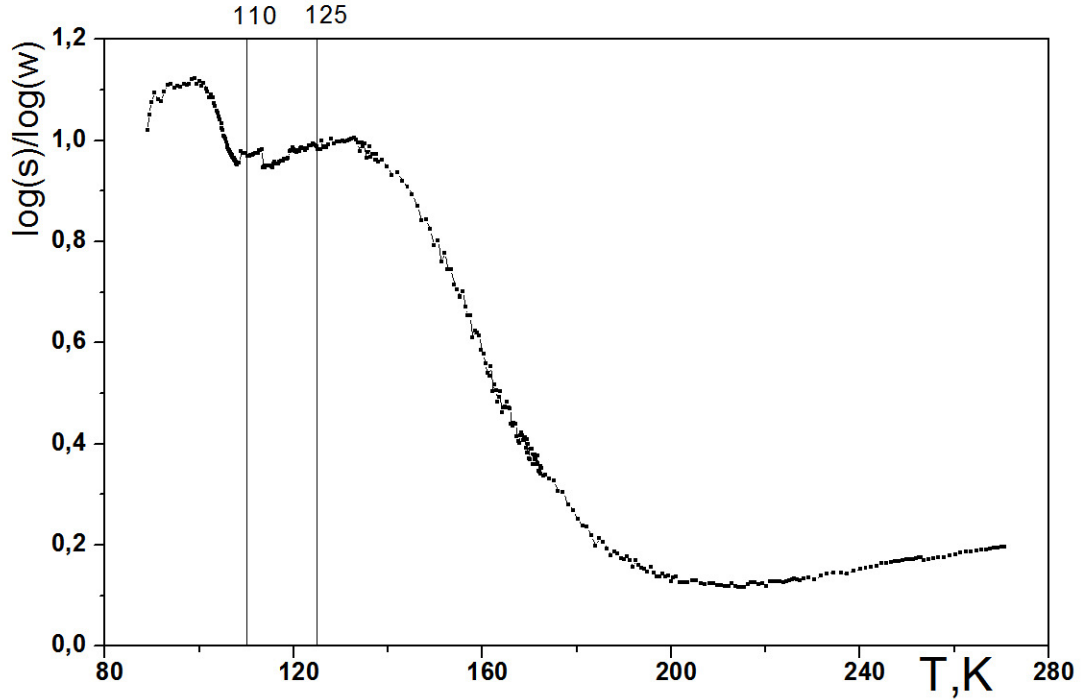
Şekil 4.39 de TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara paralel yöndeki iletkenliğin frekans fonksiyonundan elde edilen Jonscher evrensel ölçeklendirme s parametresinin sıcaklığa bağımlılığı görülmektedir. Atlama mekanizmalarının varlığını ortaya koyan bu parametre, 167K den daha düşük sıcaklıklarda öngörülen





Şekil 4.38 TlGaSe₂ kristalinde farklı sıcaklıklardaki katmanlara paralel yöndeki $\sigma(w)$ grafikleri.

1-0,6 aralığında iken bu sıcaklıktan düşük sıcaklıklarda serbest yüklere bağlı standart aktivasyon mekanizmasının baskın olmasından dolayı bu değerlerden daha düşük değerler almaktadır. Böylece $TlGaSe_2$ kristallerinin katmanlara paralel yöndeki iletkenlik mekanizması tespit edilmiş olmaktadır.



Şekil 4.39 $TlGaSe_2$ kristallerinin katmanlara paralel s parametresinin sıcaklığa bağlılığı.

4.2.2.2 $TlGaSe_2$ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Dielektrik Fonksiyonu

Farklı sıcaklıklarda $TlGaSe_2$ kristallerinin katmanlara paralel yöndeki dielektrik fonksiyonu nun gerçel ve sanal kısımlarının frekansa bağlılığı Şekil 4.40 de sunulmuştur. Şekil de düşük frekans dağılımı, sıcaklık düşmesine uygun olarak azalan D.C iletkenliğin giderek kaybolduğu iyice görülmektedir. Sanal kısmın geniş bir frekans aralığında hiçbir belirgin maksimumdan geçmediği görülmektedir. Şekil 4.40-c-d ve e de sıcaklık artışı ile ϵ' ve ϵ'' arasındaki kesişme noktasının yüksek frekanslara kayması iyice görülmektedir. Bu tür davranış elektrik modülü davranışı ile daha iyi açıklanabilmektedir. Düşük sıcaklıklarda, gerçel ϵ' kısımlarının yüksek

frekanslarda doyuma gidişi Şekil 4.40(a) de gösterilmektedir [Wang and Dou,2009]. Düşük frekanslarda yarı iletkenler için D.C iletkenliğin karakteristik katkısından dolayı ϵ' de bir artış söz konusudur.

Yukarıda araştırmada görüldüğü gibi, TlGaSe₂ kristallerin katmanlara paralel yönde, yarıiletkenler için karakteristik olan standart bir davranış gösterir [Wang and Dou,2009], [Jonscher,1999]. Yani TlGaSe₂ kristalleri homojen olmayan yarı iletken malzemelerde gözlenen genel davranış göstermektedir. Bu durumda genel dağılım bağıntısı aşağıdaki gibi olan Debye tipi durulma ve bir D.C iletkenlik terimin üst üste süper pozisyonu tarafından temsil edilebilir: [Seyidov,2009]

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_s - \epsilon_{\infty}}{1 + i\omega\tau} + \frac{i\sigma_{dc}(T)}{\omega} \quad (4.17)$$

Burada ϵ_s ve ϵ_{∞} , statik ve yüksek frekanslı dielektrik geçirgenlikleri, τ durulma zamanı ve $\sigma_{dc}(T)$ sıcaklığa bağlı D.C iletkenliktir. Bir kural olarak, homojen olmayan kristaller için önerilen Maxwell-Wagner modeli bu durumda Debye tipi durulma mekanizmasından sorumludur [Wang and Dou,2009].

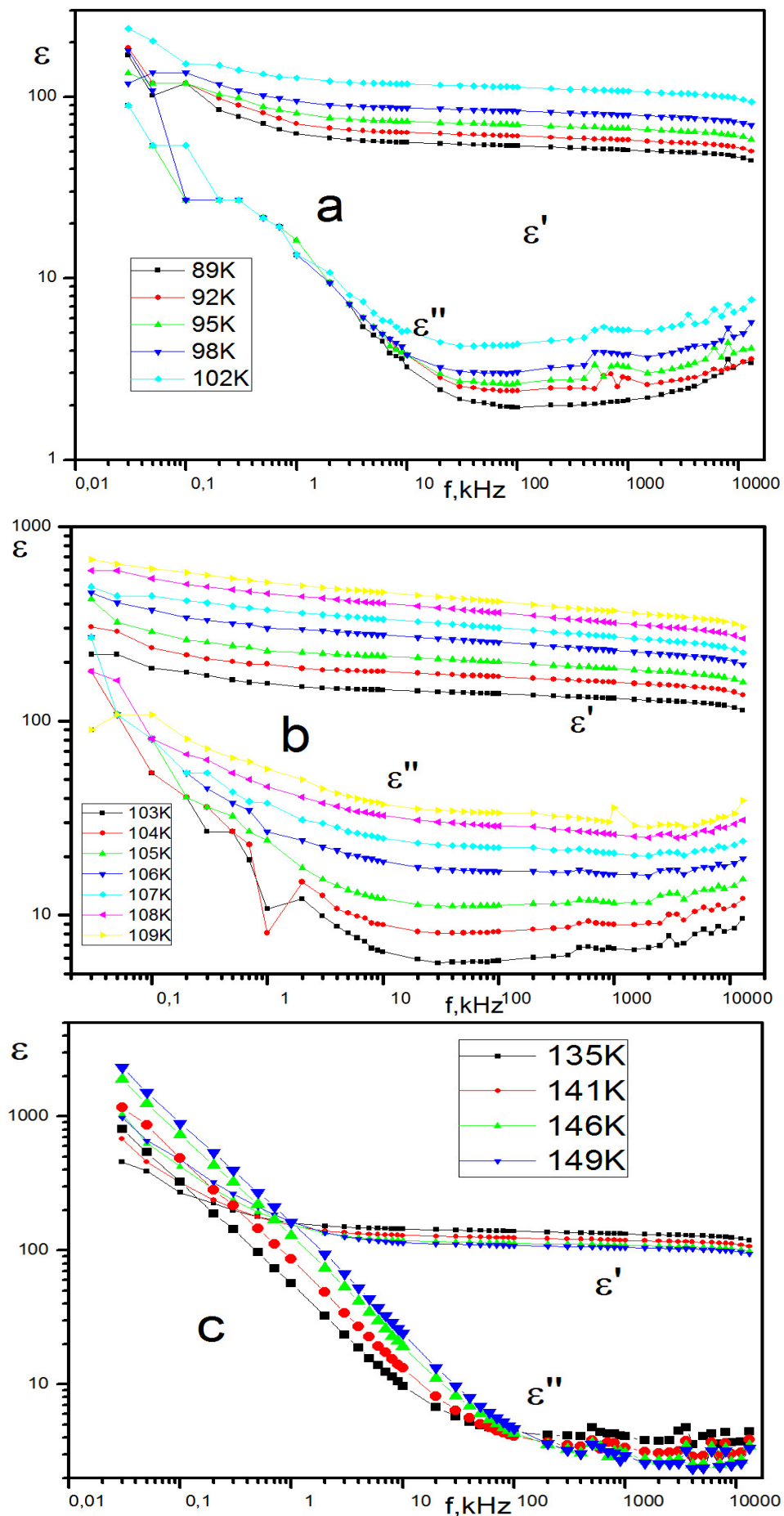
Bu modele göre, durulma zamanı τ 4.18 daki bağıntı ile ifade edilir. Burada iki kısmın, iletkenlikleri σ_1 , σ_2 ve dielektrik geçirgenlikleri ϵ_1 , ϵ_2 dir. Deney sonuçlarının yorumlanmasını basitleştirmek için her iki bölümden eşit kalınlıkta varsayılmıştır. Dielektrik fonksiyonun ve iletkenliğin gerçek ve sanal kısımları frekans bağımlılık durumu aşağıdaki formülleri kullanarak kolayca gösterilebilir: [Seyidov,2009]

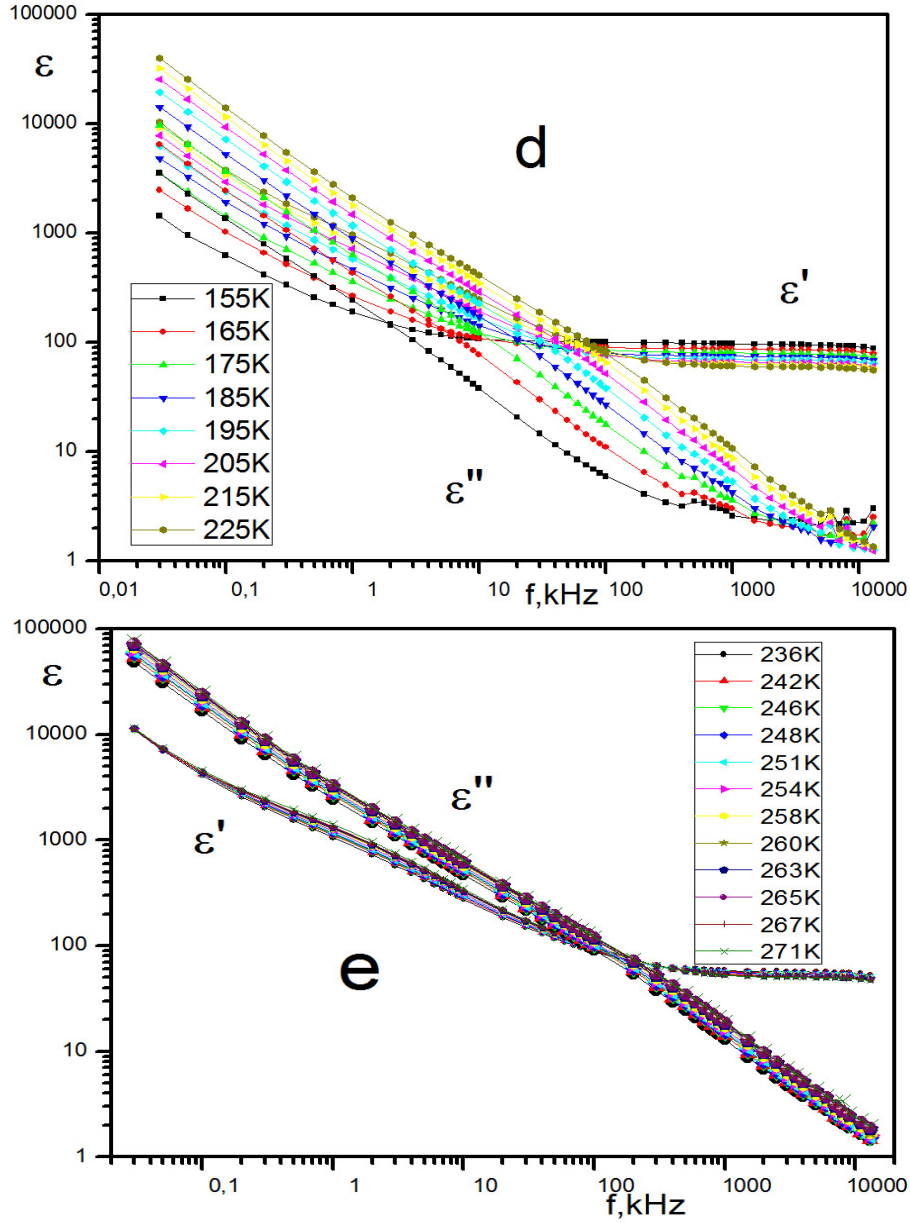
$$\tau \approx \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{\sigma_1 + \sigma_2} \quad (4.18)$$

$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_s - \epsilon_{\infty}}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (4.19)$$

$$\epsilon''(\omega) = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_{\infty})\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} + \frac{\sigma_1\sigma_2}{\omega(\sigma_1 + \sigma_2)} \quad (4.20)$$

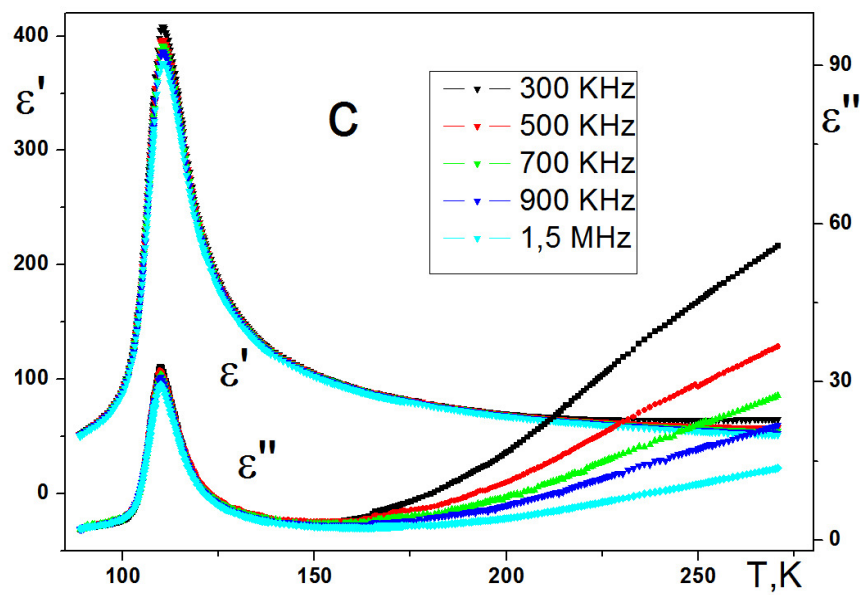
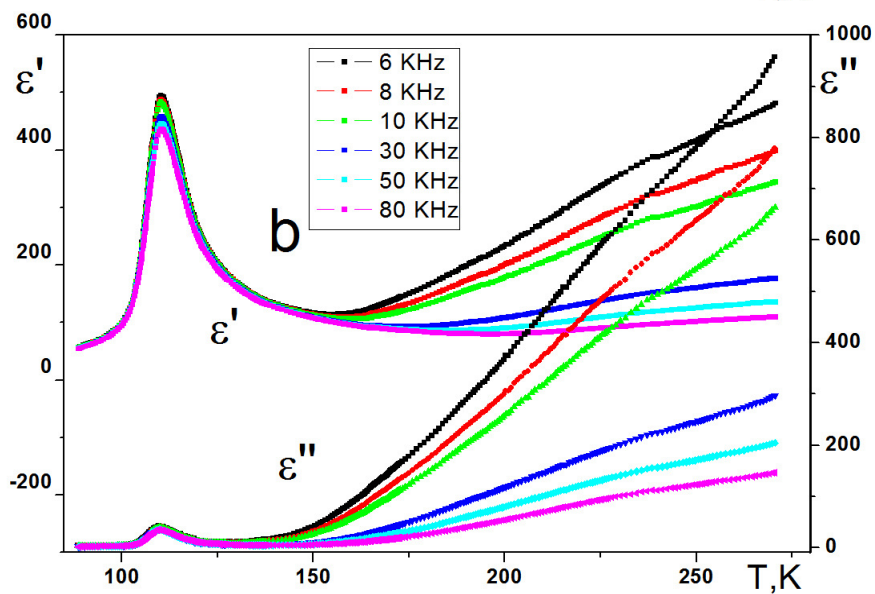
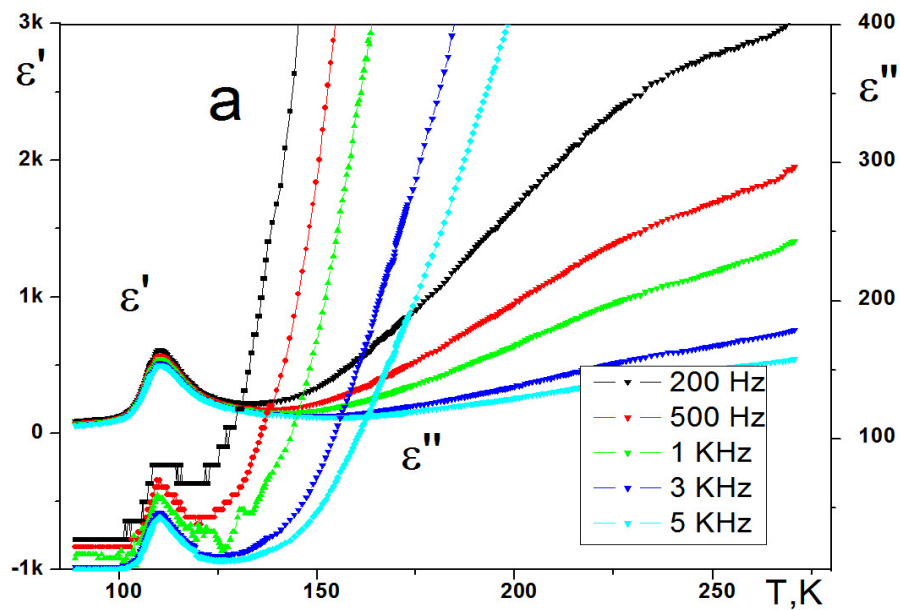
$$\sigma(\omega) = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_{\infty})\omega^2\tau}{1 + \omega^2\tau^2} + \frac{\sigma_1\sigma_2}{(\sigma_1 + \sigma_2)} \quad (4.21)$$

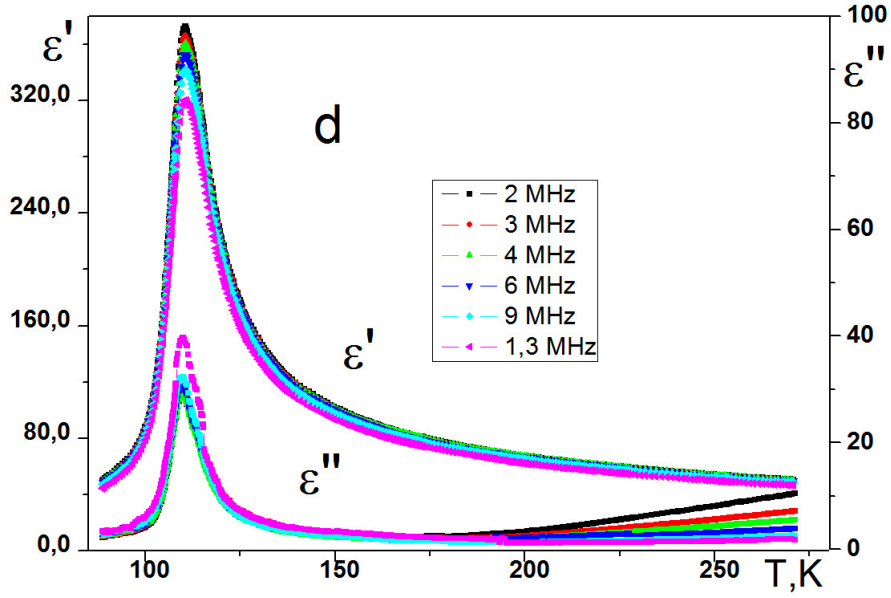




Şekil 4.40 TiGaSe₂ kristalinin farklı sıcaklıklarda katmanlara paralel yöndeki $\epsilon'(w)$ ve $\epsilon''(w)$ grafikleri.

TiGaSe₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak dielektrik fonksiyonu gerçek ve sanal kısmın farklı frekanslarda sıcaklığı bağımlılığı Şekil 4.41 de sunulmuştur. Burada görüldüğü gibi her iki dielektrik fonksiyonunda da bilinen 110K de ki faz geçişine ait pikler mevcuttur. Ancak oransız faz geçişine ait bir davranış sergilememektedir. Burada düşük frekanslarda yüksek sıcaklıklarda dielektrik fonksiyonlarının yüksek değer alması yine yüksek sıcaklıklarda serbest yüklerin davranışını orta koyan bir durumdur.

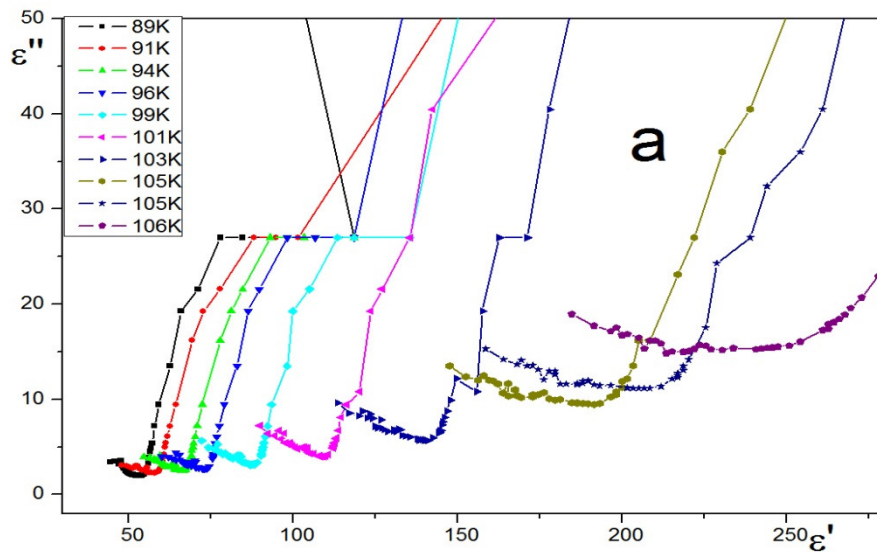


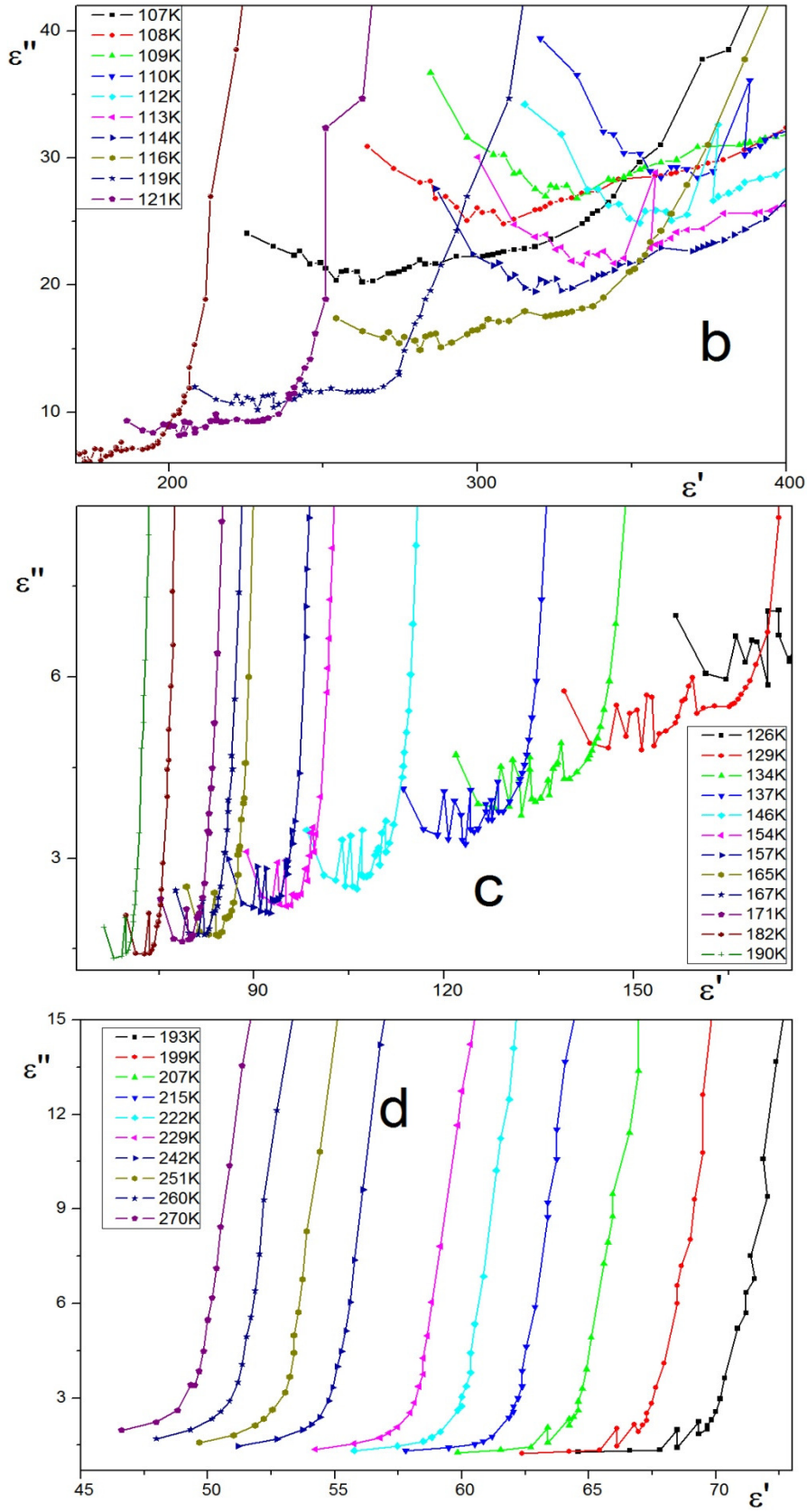


Şekil 4.41 TiGaSe_2 kristalinin farklı frekanslarda katmanlara paralel yöndeki $\epsilon'(T)$ ve $\epsilon''(T)$ grafikleri.

4.2.2.3 TiGaSe_2 Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Cole-Cole Diyagramı

Şekil 4.42 de TiGaSe_2 kristallerinin katmanlara paralel olarak yüksek frekanslı bölgedeki Cole-Cole diyagramlarının sıcaklığa bağımlılığı görülmektedir. Şekil 4.42a ve b de düşük sıcaklıklarda kısmen yarım çemberin ibareleri görülürken sıcaklık arttıkça bu görünüm kaybolmakta.



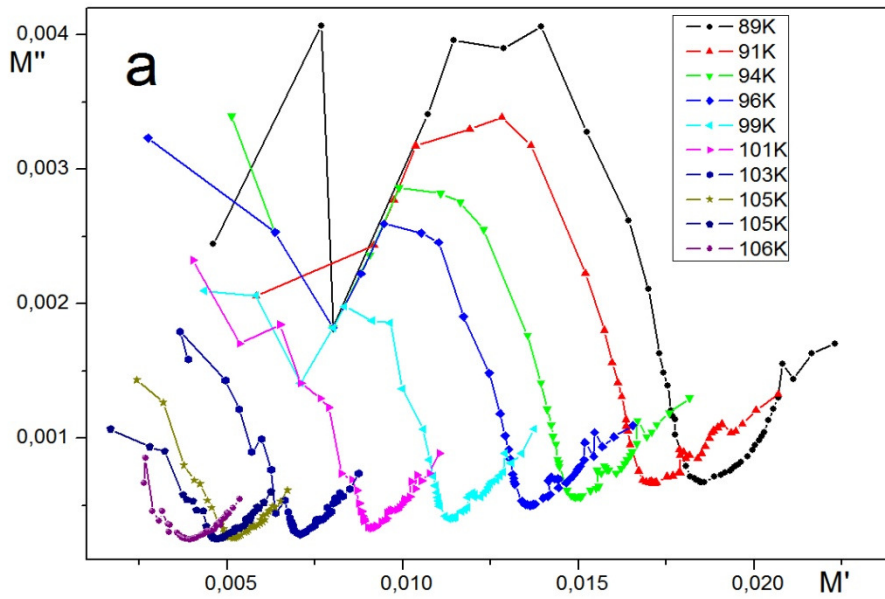


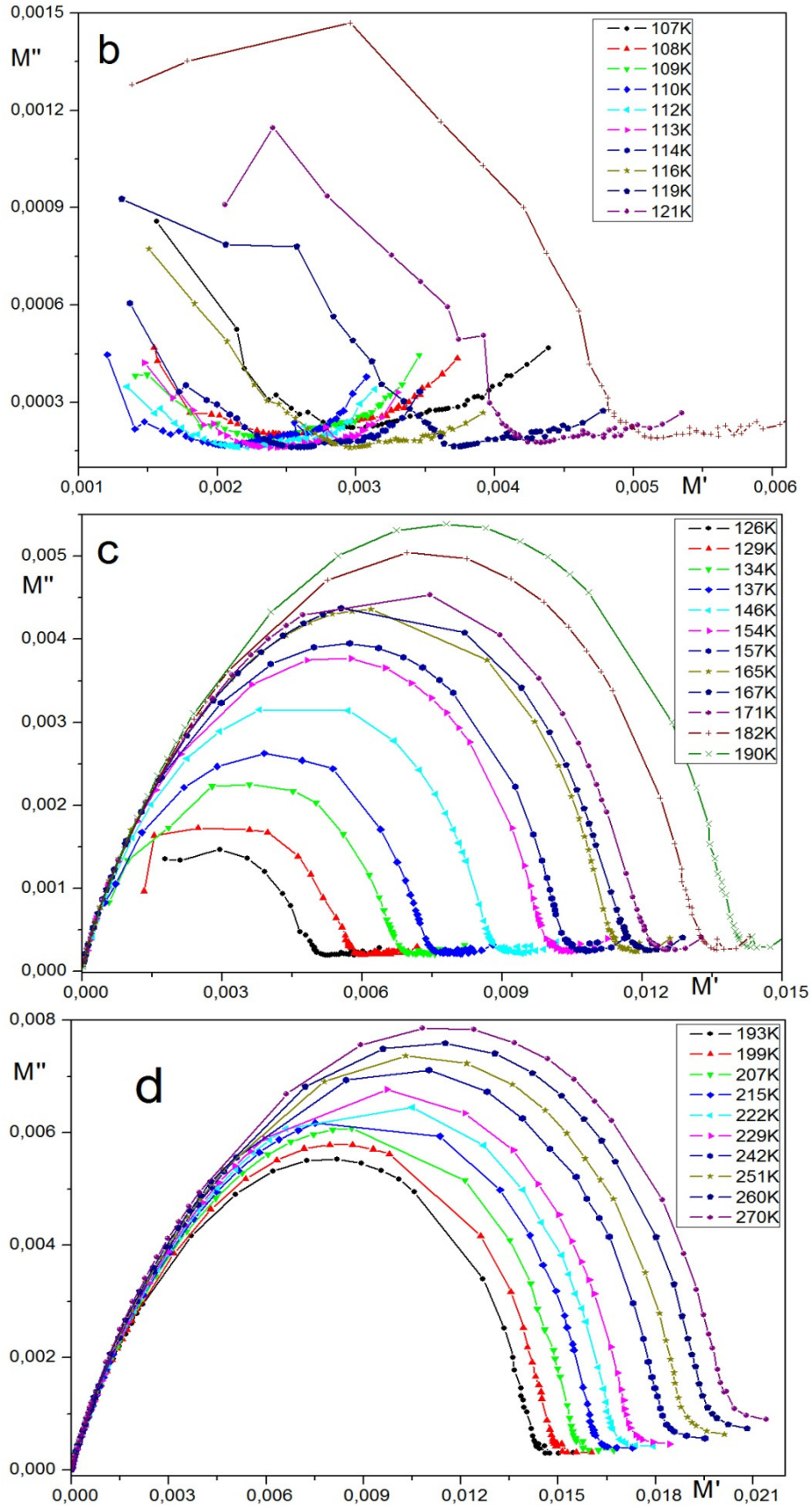
Şekil 4.42 TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak yüksek frekanslardaki Cole-Cole diyagramlarının sıcaklığa bağımlılığı.

Bu durum hem yüksek sıcaklıklarda serbest yüklerin baskısını hemde çemberlerin maksimumlarının çok yüksek frekanslarda olduğunun bir göstergesidir. Şekillerdeki Cole-Cole diyagramlarında düşük frekanslar olan yüksek değerler sahip kısımların sağ tarafta ikinci bir maksimum yapmaya yönelik durumu, bu kristallerin daha düşük frekanslarda incelenmesini gerekliliğini ortaya koymaktadır. Burada durulma zamanlarının elde edilmesi mümkün olmadığından durulma zamanlarının elde edilmesi için Argand diyagramlarını kurmakta yarar vardır.

4.2.2.4 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Elektriksel Modülünün Argand Diyagramları

Kristaller için elektriksel özellikler genellikle direnç (R) ve kondansatör (C) lerin seri ve paralel kombinasyonu varsayarak elde edilen eşdeğer elektrik şemaları belirlenir. Spektrum analizi temel iletim mekanizmasının daha iyi anlaşılması için ve bu katkıları ayırmak amacıyla kompleks elektrik modülü $M^* = 1/\epsilon^*$ kullanılır. Bu kompleks elektrik modülü en küçük bir kapasitanstan oluşan dielektrik sistemin elektriksel olaylarını gösterdiği bilinmektedir. Elektrik modülü formalizmi elektrot kutuplanması ile ilgili istenmeyen deneysel yapay etkileri bastırarak temiz veri sunar [Jonscher,1983].





Şekil 4.43 TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak elektrik modülünün argand diyagramlarının sıcaklığa bağlılık grafikleri

Elektrik modülüsün sanal kısmı D.C iletkenlikle orantılı olarak değişen bir frekansta meydana gelen iyice belirgin maksimum sergiler. Şekil 4.43 da katmanlara paralel olarak Elektrik modülünün argand diyagramlarının sıcaklığı bağımlılığı görülmektedir. 125K den sonraki tüm sıcaklıklarda argand diyagramları belirgin bir maksimum sergilemektedir. Maksimumların pozisyonları, ω_m , $\omega_m \tau = 1$ eşitliğini kullanarak durulma zamanının sıcaklık bağımlılığı elde edilmesine olanak sağlar. Bu şekillerin ortak noktası maksimum noktasına göre simetrik olmamasıdır. Buda aslında bu sıcaklık aralığında en az iki iletkenlik mekanizmasının bir ara olduğu durumu sergilemektedir. Bu mekanizmalarda yukarıda bahsettiğimiz sebeplerden dolayı atlamalı ve katkı-band geçişi mekanizmalarıdır. Yüksek sıcaklıklara ve düşük sıcaklıklara gidildikçe çemberlerin daha simetrik olması bu iki mekanizmanın giderek bir birinden ayrıştığını göstergesidir.

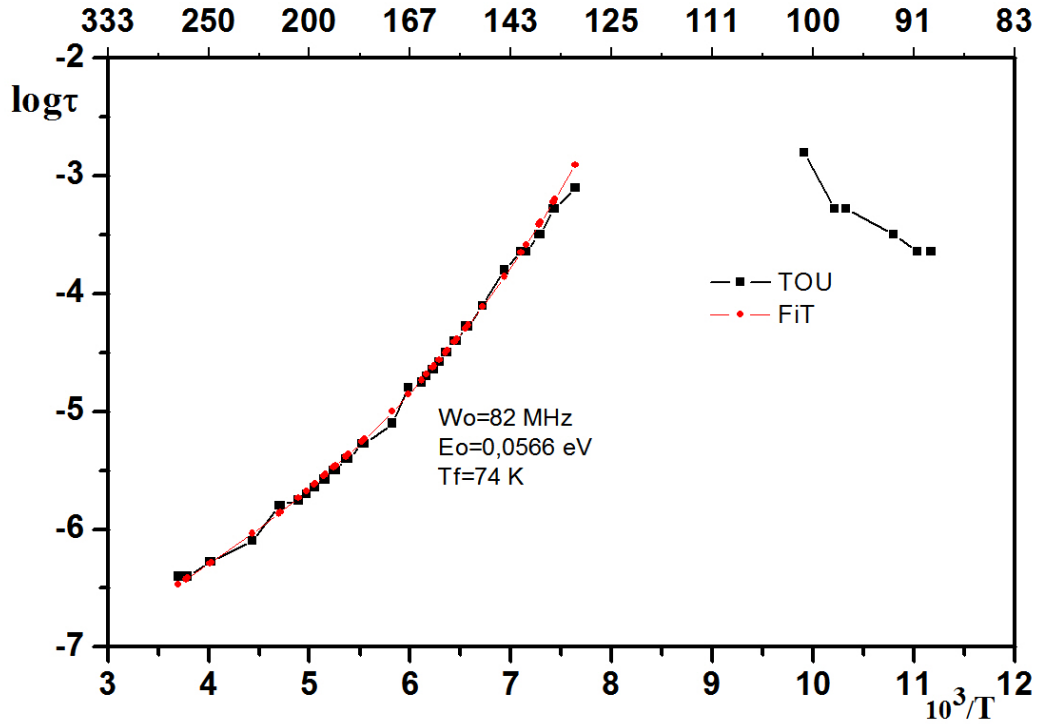
4.2.2.5 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki Durulma Zamanı

Yük taşıyıcılar için durulma zamanı τ , elektrik modülü maksimum değerlerinden $\omega_m \tau = 1$ koşulu ile elde edilebileceğinden yukarıda bahsedilmiştir. Her iki yön için deneysel olarak ölçülen elektrik modülü eğrilerinden hesaplanan durulma zamanlarının sıcaklık bağımlılık Şekil 4.35 ve 4.44 de gösterilmiştir:

Şekil 4.35 ve 4.44 de TlGaSe₂ kristallerinin her iki yöndeki durulma zamanı beklenen Debye davranışına uygun hareket etmediğini göstermek için Arrhenius çizimi verildi. Vogel-Fulcher bağıntısı yardımıyla $\tau(T)$ sıcaklık bağımlılığını şekildeki gibi, uydurmak mümkün oldu [Vogel, 1921],[Fulcher, 1925], [Tagantsev, 1994].

Şekilde görüldüğü gibi, paralel yönde ölçülen durulma zamanı aksine, dik yönde durulma zamanı 145K-190K sıcaklık aralığında oldukça olağandışı "kritik" davranışı gösterir. Bu Jonscher in yarıiletken GaAs kristallerinin belli bir sıcaklık aralığında dielektrik özelliklerini incelenerek durulma zamanı ölçüm sonuçlarında saçma "kritik" davranışa bahsettiği duruma benzemektedir. GaAs kristallerinin bu sıcaklık aralığı içinde hiçbir yapısal faz geçişi bulunmadığı bilindiğinden dolayı

yazar [Jonscher et al,1994] bu davranış bazı "elektronik faz geçişinin" bir sonucu olarak yorumlamışlardır.

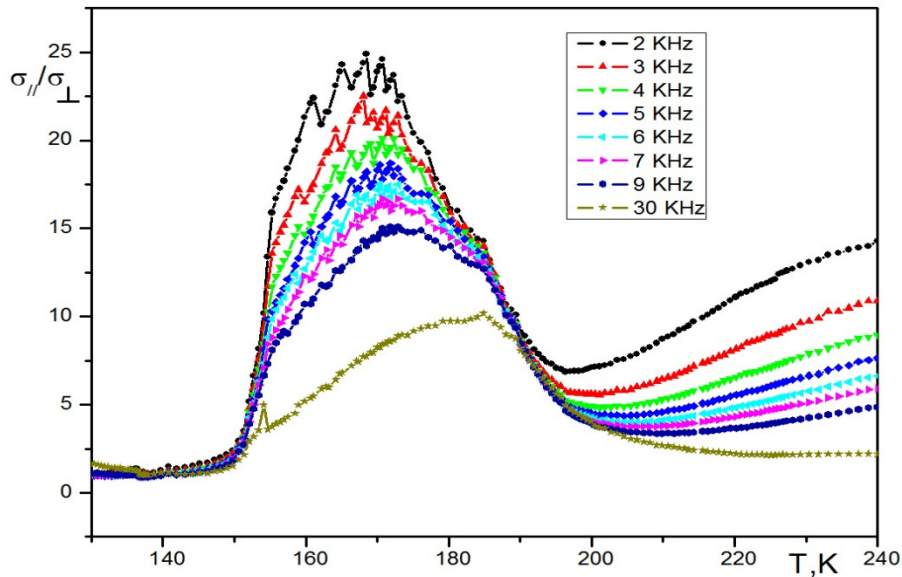


Şekil 4.44 TlGaSe₂ kristallerinin katmanlara paralel olarak Elektrik modülünün argand diyagramlarından hesaplanan $\tau(T)$ grafiği. [Salehli et al,2007]

GaAs kristallerinin aksine, TlGaSe₂ kristallerin çeşitli fiziksel parametrelerin özellikleri sahip olduğu örgü parametreleri "kritik" sıcaklık bölgesinin tescil ettirilmiştir. Termal genleşme ve X-ray difraksiyon ölçümleri örgü parametresinin 180K ne [Seyidov and Suleymanov,2010] yakın sıcaklıklarda büyük ölçüde artış göstermiştir. Ayrıca c örgü parametresinin bu sıcaklık bölgesinde değişmeden kaldığını da belirlemiştir. Soğutma sırasında TlGaSe₂ kristallerinin "kritik" sıcaklıkları yakın sıcaklıkta örgü deformasyonu gerçekleştiği sonucuna varılmıştır: Katmanlar, katmanları düzlemde genişlerken dik yönde daralmıştır. Böylece tabakalar arası mesafeler artmış ve c parametresi değişmeden kalmıştır. TlGaSe₂ kristallerin gerçekleşen böyle bir deformasyon neden sadece farklı taşıma mekanizması özelliklerinin özellikle katlar düzlemine dik yönde görüldüğünü açıklıyor. [Belenkii and Stopachinskii,1983]. Gerçekten, katmanlı kristallerdeki taşıma özelliklerinin kuvvetli anizotropi nedeniyle özellikle katmanlar arası

bariyerlerin belirleyici olduğu bilinmektedir. Bu tür bariyerler katmanlara paralel yöndeki iletkenliği etkilemezken katmanlara dik yönde iletkenliği önemli ölçüde etkiler.

Sonuç olarak, katmanlı kristaller iletkenliğinin anizotropisi $\sigma_{\parallel}/\sigma_{\perp}$ katlar arası bariyerlere bağlıdır. Bu durum Şekil 4.45 de TlGaSe₂ kristallerinin iletkenlik anizotropisini sıcaklığa bağlı olarak gösterilmiştir. Bu şekilde görüldüğü gibi, TlGaSe₂ kristallerden $\sigma_{\parallel}/\sigma_{\perp}$ oranı σ_{\perp} daki önemli azalma nedeniyle "kritik" bir sıcaklık aralığındaki maksimum değere sahiptir. Katlar arası bariyerlerin yeniden inşasının temelde anizotropiyi birkaç kez artırmak için gereklidir. Böylece katlar arası bariyerlerin 140-190K sıcaklık aralığında artmasının sebebi faz geçişli kökeni olduğunu varsayılmaktadır. Maxwell-Wagner modelinde durulma zamanı kritik artışa neden σ_{\perp} teki ani azalma olduğunu 4.19 da ki ifadeden ortaya çıkıyor. Böylece, yukarıda tanımlanan deneysel bulgularla şu ana sonuç çıkarımı yapılabilir:



Şekil 4.45 TlGaSe₂ kristalinin $\sigma_{\parallel} / \sigma_{\perp}$ oranı

140K-190K sıcaklık aralığında yer alan faz geçişleri sadece katmanlara dik yönde taşıyıcıların büyük ölçüde hareketini etkiler. TlGaSe₂ kristalleri 140K-190K sıcaklık aralığında yer alan faz geçişinin kesin doğası şu anda bilinmediği için sadece bir yöndeki yük hareket etkilediğinden yük dengesizliğinden dolayı bir tür "katlar arası düzenlenme" olarak düşünülebilir. [Seyidov,2009] Bu sıcaklık aralığındaki

davranışın DC deki yansımalarını ve uygulanan potansiyele bağlılığını incelemek amacıyla I-V karakterizasyonu yapıldı.

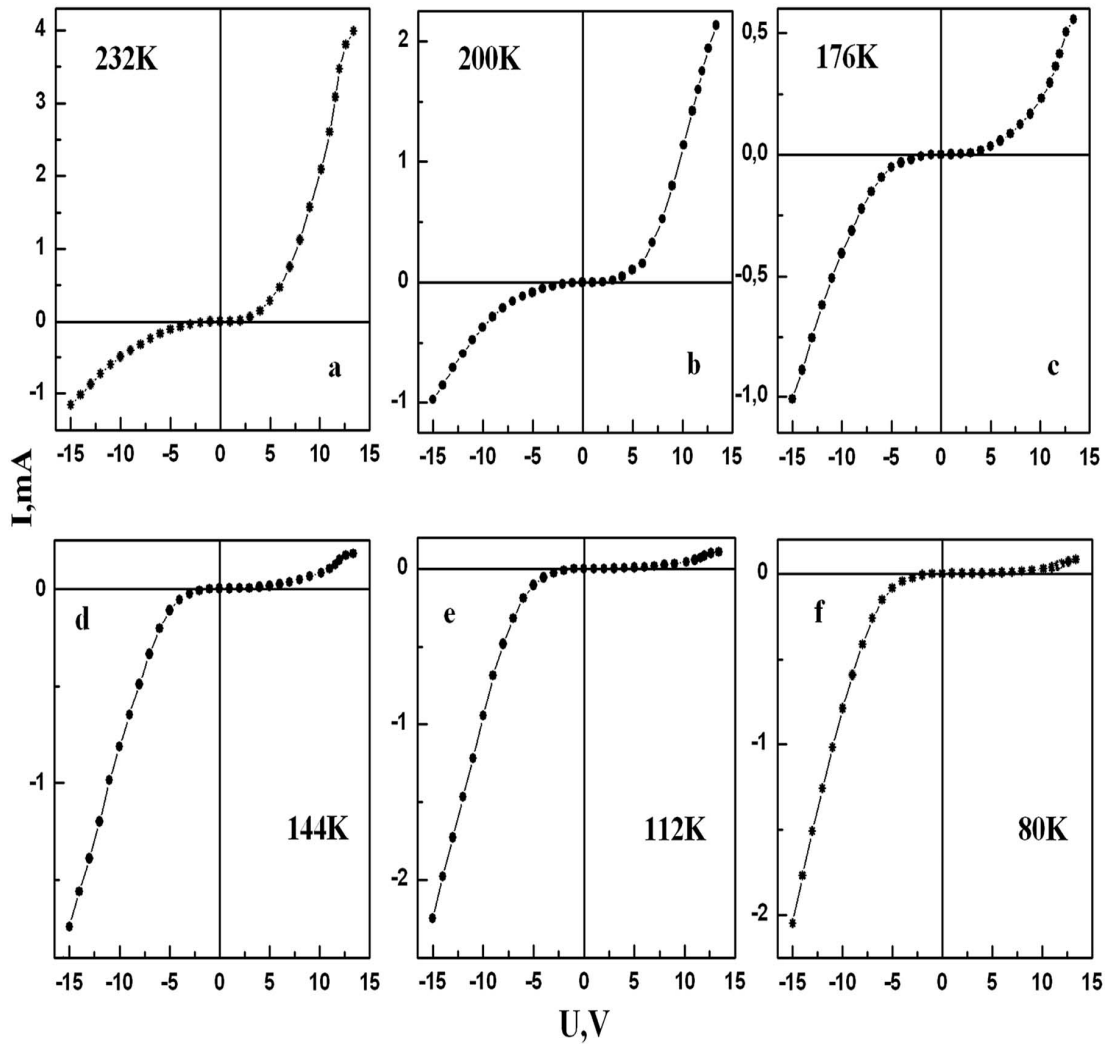
4.2.2.6 TlGaSe₂ Kristalinin Katmanlara Paralel Yöndeki I-V Karakterizasyonu

Şekil 4.46 da Au/TlGaSe₂ eklemının akım-gerilim, I-V, karakteristikleri gösterilmektedir. Burada oda sıcaklığına yakın bir sıcaklıkta doğrultucu davranış bulundu. Şekil 4.46 a. -15V bias voltajında çok daha küçük akım gözlenirken +15V bias voltajında akımı dik olarak artmaktadır. Schottky Mott teorisine göre ideal bir metal-yarıiletken eklem için, p-tipi yarıiletken söz konusu olduğunda metalin iş fonksiyonu yarı iletkeninkinden düşük ise bir doğru beslenme ile sonuçlanır. Açıkça Şekil 4.46-a da görüldüğü gibi, yüksek sıcaklıkta, 232K doğrulmanın bir göstergesi daha küçük bir iş fonksiyonuna sahip Au metali ve p-tipi yarıiletken ile üretilmiş bir Schottky eklem I-V grafiğidir. Fakat ileri biasa karşılık gelen akımın mutlak değeri, sıcaklık azaldıkça gitgide küçülür ve hatta Şekil 4.46-b,f gösterildiği gibi ters bias akımından bile küçük olur. Aynı zamanda, ters beslenmeye karşılık gelen akımın mutlak değeri sıcaklık azalırken biraz daha yükselir. I-V karakteristiğinin bu sıcaklığa bağlı davranışı sonucunda ilk önce 175K da V=0 'a göre hemen hemen simetrik ve sonra, diyot polaritesi 144K da tersine döner. T<140K sıcaklıkta net bir doğru beslenme davranış gözlemlendi: -15 V bir besleme uygulandığında akım dik olarak büyürken, +15V ta uygulandığında ihmal edilebilir bir akım gözlemlendi.[Seyidov,2010]

Böyle bir davranış için iki olası mekanizma olarak önerilebilir. İlk olasılık sıcaklık ile iletkenlik p-tip ten s-tip arasında terslenebilir. Ancak, TlGaSe₂ kristalleri böyle bir davranış ile ilgili başka bir deneysel kanıt yoktur. Daha kesin analiz için aşağıda mevcut başka bir olası mekanizmayı tartışmak gerekir.

Açıkça Şekil 4.46 de sunulan verilerden görüldüğü gibi, özellikle doğru besleme için sıcaklık düşmesiyle eklem akımının değerinin anormal düşüşü ve ters akımın sıcaklık azaldıkça artması gibi beklenmedik bir sıcaklık bağımlılığı nedeniyle doğru kutuplanmanın terslenmesinin temel sebebidir.

Bu olayların düşük sıcaklıklarda gözlenen anormal I-V lerin anlaşılmasında anahtar rol oynadığını düşünüyoruz. Bu durum tünel diyotlarda gözlenen duruma çok benzemektedir. Kısacası, düşük sıcaklıklarda kaydedilen I-V karakteristikler bir ters diyot karakteristiğine benzemektedir. Bu tür davranış tünel akımının belirleyici rolünün dikkate alınması gerektiğini açıkça ortaya koyar. Aslında, tünel rejiminde, bir ters besleme uygulandığında, bir p-tipi yarıiletkenin valans bandında ilk durumlarının sayısı artar ve dolayısıyla eklem akımı da hızla artar. Ancak, akım böyle bir artış doğru besleme altında beklenmemektedir: değerlik bandının üstü, Au nun Fermi seviyesinden daha düşük olur. Sıcaklık arttığında, ters tünel akımında önemli bir değişiklik olmayacak oysa Schottky bariyer üzerinde direkt besleme akım her zamanki termal destekli geçişler nedeniyle artacaktır.



Şekil 4.46 Schottky eklemli Au/TlGaSe₂ kristalinin çeşitli sıcaklıklardaki I-V karakteristiği. [Seyidov,2010]

Yukarıda yapılan analiz geçmiş yıllarda metal-yarıiletken kontakların doğrulma mekanizmaları hakkında yapılan büyük tartışmaları hatırlatması ilginç bir nottur. 1932 yılında Wilson tarafından önerilen ilk düzeltme teorisi, düzeltme için yanlış sonuç verdi, çünkü sadece tünel akım dikkate alınmıştı [Wilson,1932]. Ancak daha sonra, tünel akımının bileşeni tamamen göz ardı edildi çünkü ideal bir metal-yarıiletken eklem için Schottky-Mott düzeltmesi doğru yaklaşımı verdi. Tünel ve normal akım bileşenlerinin her ikisi de dikkate alındığı zaman, deneylerimizde gözlemlediğimiz I-V karakteristiği ne çok benzer bir forma dönüştü [Dilworth,1948]. Bu nedenle, bir kez daha Au/TIGaSe₂ Schottky eklemelerinin ana özelliği tünel akımda önemli rolü olduğu sonucuna ulaşıyoruz

Aşağıdaki soruna özel dikkat gerekir. Neden 145K ve 190K sıcaklık aralığında doğrultucu kutupluluk terslenmesi faz geçişleri ile aynı sıcaklık aralığı görülmektedir. Bu sorunu tartışmak için belirtilen sıcaklık bölgesinde TIGaSe₂ kristallerinin iletkenlik ve dielektrik özel davranışı göz önüne alınmalıdır. Bu parametrelerin her ikisi de daha önce açıkça gösterildiği gibi 145K-190K sıcaklık bölgesinde büyük değişikliğe uğrar [Salehli et al ,2007]. Bu sıcaklık bölgesinde iletkenlikteki gözlenen düşüş ileri yönde tünel akımını büyük ölçüde azaltacaktır. TIGaSe₂ kristallerinin kutuplanabilirliği elektronik alt sistemlerde gerçekleşecek faz geçişleri nedeniyle 145K-190K sıcaklık aralığında önemli ölçüde azalır. Dielektrik geçirgenliğin azalması Schottky bariyer parametrelerinde önemli bir sıcaklığa bağımlılığa yol açacaktır. Schottky bariyerin yüksekliği sıcaklığından bağımsız olması beklendiğinden dolayı, Schottky bariyer genişliğinin önemli bir ölçüde sıcaklıkla azalması varsayılabilir. Tünel olayı gibi ısısal olmayan taşıma, klasik termo iyonik emisyon akımı bariyer genişliğine bağlı olmamasından dolayı düşük sıcaklık bölgesinde TIGaSe₂ kristallerinin I-V karakteristiklerinin sıcaklığa bağımlılığı hâkim olacaktır.

Diyot kutbu terslenmesi yukarıdaki tartışmaya dayalı olarak anlaşılabilir. Dar bariyer genişliği ve eklem taşımasına ihmal edilebilir termal katkıları nedeniyle düşük sıcaklıklarda, $T < 145K$, doğrudan tünelleme hâkimdir. Bu rejimde, bir ters besleme uygulandığında eklem akımı hızla artar. Ancak, böyle bir akım artış doğru kutuplama altında beklenmemektedir: mekanizma tünel diyotla aynıdır. Sıcaklık

artması $T > 190K$, bariyer genişliğini yerel dielektrik geçirgenlik kurtarıcı olarak büyütülür ve beklenen Schottky bariyer davranışları görülmektedir. Her zamanki termal destekli geçişler önemli hale gelmektedir.

Böylece, önerilen mekanizma metal-yarıiletken arayüz yakınında öncelikle iletkenlik ve dielektrik geçirgenlik dramatik dönüşümlerine dayanmaktadır. Bu tür dönüşümler elektronik geçişler sonucu olarak 145K-190K sıcaklık aralığında ortaya çıkan büyük iç elektrik alanlarına bağlı olabilir [Seyidov,2006], [Salehli et al ,2007], [Seyidov and Suleymanov,2008]. Açıklanan deney sonuçlarına göre $TlGaSe_2$ kristallerinde belirtilen sıcaklık aralığında elektriksel ve optik özelliklerini alanlarında büyük ölçüde etkisi vardır .[Seyidov,2010]

SONUÇ VE TARTIŞMALAR

TlInS₂ kristaline ait sonuçlar:

1. TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yönde 315K den düşük sıcaklıklarda, katmanlara paralel yönde faz geçişinden düşük sıcaklıklardaki ferroelektrik faz daki sıcaklıklarda, iletkenlik spektrumlarının yüksek frekans bölgesinden elde edilen σ parametresinin sıcaklık fonksiyonunun Jonscher evrensel ölçeklendirme kanununa uygun olarak değiştiği tespit edilmiştir. Bunun sonucu iletkenlik mekanizmasının bu sıcaklıklarda atlama mekanizmasıyla gerçekleştiği belirlenmiştir.

Belirtilen bu sıcaklığın üstündeki sıcaklıklarda katkılarla bağlı olan standart aktivasyon mekanizması olduğu, düşük frekanslardaki iletkenliğin sıcaklık grafiklerinden tespit edilmiştir. Ayrıca bu grafikten aktivasyon mekanizmasına ait enerji değerleri, katmanlara dik yönde 0,16 eV katmanlara paralel yönde 0,14 eV olduğu belirlenerek ölçülen sıcaklık aralığında iletkenlik mekanizmaları tespit edilmiştir.

2. TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yönde ϵ' - T faz geçişi sıcaklıklarında maksimumdan geçerken σ - T ve ϵ'' - T faz geçişine ait pik görülmemekte ve 315K dan düşük sıcaklıklarda, sıcaklıktan bağımsız davranmaktadır. Katmanlara paralel yönde ise σ - T , ϵ' - T ve ϵ'' - T de faz geçişine ait piklerin her ikisi de görülmektedir. Dik ve paralel yöndeki bu farklılık yapısal faz geçişinin katmanlara paralel yönde gerçekleşmesinin bir sonucudur.

3. TlInS₂ kristalinde katmanlara dik yönde 315K dan daha düşük sıcaklıklarda Cole-Cole diyagramlarının maksimumundan elde edilen durulma zamanlarının elektriksel modülün geniş sıcaklık aralığında atlama mekanizmasına bağlı olan düşük frekanslardaki elde edilen durulma zamanları benzer davranış sergilediği görülmüştür. Katmanlara paralel yönde ise Cole-Cole diyagramlarının sadece uç kısmı görülmüştür. Cole-Cole diyagramlarından yarım çember elde edilemediğinden 30Hz-13MHz frekans bölgesinde bir dipol durulması görülmemektedir. Bununla birlikte durulma zamanları Cole-Cole diyagramlarından değil elektriksel modülün

geniş sıcaklık aralığında atlama mekanizmasına bağlı olan düşük frekanslardaki durulma zamanları elde edilmiştir

4. TlInS_2 kristalinde katmanlara dik yönde düşük sıcaklıklarda düzensiz (disorder) davranışı durulma zamanının sıcaklık ilişkisinde ortaya çıkmaktadır. 315 K den yüksek sıcaklıklarda iletkenlik mekanizmasındaki değişim durulma zamanının 1000K artması ve τ nun üstel olarak azalan bir fonksiyon olarak kendini ortaya koymaktadır.

Katmanlara paralel yönde ise elde edilen durulma zamanının sıcaklık fonksiyonunun faz geçişine ait özel davranışlar gözlenmiştir. Gerek dik yöndeki yüksek sıcaklıklarda ki elde edilen durulma zamanlarının gerekse paralel öndeki 210K-250K arasındaki durulma zamanını sıcaklık fonksiyonunun Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan davranışı tespit edilmiş ve bu davranışa uygun camsı geçiş sıcaklığı dik yönde 147K paralel yönde 143 K tespit edilmiştir. Ayrıca paralel yönde 250K den yüksek sıcaklıklarda elde edilen durulma zamanlarının Arrhenius formülüne uygun davranışı tespit edilmiş ve tüm bu grafiklerde elde edilen aktivasyon enerjisi değerleri düşük sıcaklıklarda elde edilen aktivasyon enerjisi ile uyumlu olduğu görülmüştür.

TlGaSe₂ kristaline ait sonuçlar:

5. TlGaSe_2 kristalinin her iki yönde iletkenlik spektrumlarının yüksek frekans bölgesinden elde edilen s parametresinin sıcaklık fonksiyonunun Jonscher evrensel ölçeklendirme kanununa uygun olarak değiştiği bunun sonucu olarak da düşük sıcaklıklarda iletkenliğin atlama mekanizmasıyla gerçekleştiği tespit edilmiştir.

Yüksek sıcaklıklarda düşük frekanslardaki iletkenliğin sıcaklık grafiklerinden, katkılarla bağlı olan standart aktivasyon mekanizması varlığı belirlenerek ölçülen sıcaklık aralığında iletkenlik mekanizmaları tespit edilmiştir.

6. 145K-190K sıcaklık aralığında normal yarıiletken davranışın dışında iletkenliğin ve ϵ' 'nin keskin bir şekilde azalması ve çukur şeklini alması tespit edilmiştir. Gözlenen bu davranış elektronik alt sisteminde yer alan dengesiz bir faz

geçişinden kaynaklandığı gösterilmiştir. Böyle bir faz geçişi tipine "elektronik faz geçişi" denmiştir.

7. TlGaSe_2 kristalinde katmanlara dik yönde $\epsilon'-T$, $\sigma-T$ ve $\epsilon''-T$ faz geçişine ait pik görülmemektedir. Katmanlara paralel yönde ise $\sigma-T$, $\epsilon'-T$ ve $\epsilon''-T$ de katmanlara dik yöndeki 145K-190K etkileri görülmemiş, sadece faz geçişine ait piklerin her ikisi de görülmektedir. Dik ve paralel yöndeki bu farklılık yapısal faz geçişinin katmanlara paralel yönde gerçekleşmesinin bir sonucudur.

8. TlGaSe_2 kristalinde katmanlara dik yönde iletkenliğin ve dielektrik fonksiyonlarının 145K-190K arası davranışı açıklamak için homojen olmayan bir kristalin Maxwell-Wagner modeline önerilmiş ve bu modele uygun olan durulma zamanları elde edilmiştir.

9. TlGaSe_2 kristalinde katmanlara dik ve paralel yönde Cole-Cole diyagramlarından yarım çember elde edilemediğinden 30Hz-13MHz frekans bölgesinde bir dipol durulması görülmemektedir. Bununla birlikte elektriksel modülün geniş sıcaklık aralığında atlama mekanizmasına bağlı olan düşük frekanslardaki durulma zamanları elde edilmiştir.

10. TlGaSe_2 kristalinde katmanlara dik ve paralel yönde kutuplanma mekanizmaları Maxwell-Wagner modeli esasında açıklanmış ve durulma zamanları Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan davranışı tespit edilmiştir. Katmanlara dik olan yönde olan bu davranışın geleneksel faz geçiş bölgesinden uzak bir sıcaklık bölgesinde (145-175K) yeni bir faz geçişine ait davranış gözlenmiştir. Katmanlara paralel yönde ise faz geçişine ait özel davranışlar gözlenmiş ve Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan camsı geçiş sıcaklığı tespit edilmiştir (74K).

TlInS₂ ve TlGaSe₂ kristallerinin Ortak davranışları

- Her iki kristalde de katmanlı yapıdan dolayı katmanlara paralel yöndeki iletkenliğin, katmanlara dik yöndeki iletkenlikten çok daha fazla olduğu tespit edilmiştir.

- Bu çalışmanın en önemli sonuçlarından biri; her iki kristalin, kristal yapılarının aynı olmasına rağmen katmanlara dik yönde TlGaSe_2 kristali 145K-190K arasındaki sıcaklıkta elektronik faz geçişine uğrayarak farklı davranış sergilemesinin ortaya konmasıdır.
- Bu çalışmanın bir diğer önemli sonucu; her iki kristalde de durulma zamanının sıcaklık fonksiyonunun Vogel-Fulcher mekanizmasına uygun olan davranışı tespit edilmiş ve bu davranışa uygun camı geçiş sıcaklığı tespit edilmiştir.
- Bu çalışmanın önemli başka bir sonucu da; her iki kristalde de düşük sıcaklıklarda iletkenlik mekanizması atlamalı mekanizma iken yüksek sıcaklıklarda standart aktivasyon mekanizmasına sahip olduğunun tespit edilmesidir.

Gelecek çalışmalar için yöntemler ve öneriler

Öncelikle ölçülecek numunelerin yüzeyinin de fiziksel hasar olup olmadığı mikroskop altında incelenmeli ve sonra her iki yüzey farklı metallere kaplanmalı örneğin iki yüzey de altın veya bir yüzey altın bir yüzey farklı metalle kaplanmalı ve ilk önce Sıcaklığa bağlı olarak I-V karakterizasyonu incelenmeli.

Ayrıca ölçülen değerlerin cihazın ölçüm aralığında kalması için numuneler daha ince seçilmeli. Frekans aralığı mHz den 100MHz aralığında olmalı. Ve sıcaklıklar 10K den başlayarak 500K ya kadar sabit bir hızda artırılarak ölçüm yapılmalı. Tüm bu deneyler karanlık ortamda yapılmalı. Daha sonra aynı deneyler farklı dalga boylu ve farklı şiddetteki ışık altında yapılabılır ve ayrıca tüm bu deneyler özel bazı sıcaklıklarda farklı sürelerde bekletilerek bu deneyler tekrarlanabilir. Yine bu deneyler yüzeylere uygulanan farklı kuvvetlerin etkisiyle tekrarlanabilir.

Yüzeydeki fiziksel hasarın varlığının etkilerini incelemek için birkaç numunenin dielektrik ve I-V ölçümleri yapıldıktan sonra yapay olarak yüzeyinde oldukça sivri bir iğne ile yapay bir hasar oluşturup tekrar ölçüm yapılmalı.

KAYNAKLAR

1. Parlaktürk Funda, Doktora Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü ANKARA Temmuz 2007
2. Çavuş Muhammet Serdar, Yüksek Lisans Tezi, Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Adana 2006
3. Hocheimer H.D., Hencel W., Carlone C., Werner A. and Vess A., Phys. Rev., 26, 3211 (1981)
4. McMorrow D.F., Cowley R.A, P D Hatton. J Banys The structure of the paraelectric and incommensurate phases of TlGaSe, J.Phys.: Cond.Matt., 2, 3699 (1990)
5. Özdemir S., Suleymanov R.A., Allakhverdiev K.R, Mikailov F.A., Sol. St. Comm. , 96, 821 (1995) [doi:10.1016/0038-1098\(95\)00563-3](https://doi.org/10.1016/0038-1098(95)00563-3)
6. Mikailov F.A., Başaran E., Şentürk E., Journal of Phys.: Cond. Matter, 13, 4, 727-733 (2001)
7. Başaran E., Mikailov F., A, Şentürk E., Solid State Communications, 161 (2002)
8. KITTEL CHARLE introduction to Solid State Physics Eight edition 1953
9. Kaya Abidin and Fang Hsai-Yang Journal of Environmental Engineering /177 / February 1997
10. Keleş Filiz, Yüksek Lisans Tezi Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Konya 2006
11. Kwaha B. J. and Enyinna E. acta SATECH Journal of Life and Physical Sciences 185 - 191 (2009)

12. İyibakanlar Gülay ve Oktay Ali Havacılık ve Uzay Teknolojileri Dergisi Cilt 3 Sayı1 (11-19) Ocak 2007)
13. Rolf E. Hummel Electronic Properties Of Materials 3rd darksiderg (185),2000
14. Bueche F. Principles of Physics ,Singapore, p. 427-4331992
15. Knight Rosemary J. and Nur Amos Geophysics Vol.52 No 5., 1987
16. Kao Kwan Chi Dielectric Ponemana in Solids,2004
17. Hook J.R.Hall H.E solidstate physic Hook J.R., Hall H.E., Katıhal Fiziği 1998
18. Popescu M., Bunget I., “Physics of Solid Dielectrics”, Elsevier, Amsterdam, 206-245, 282-291 (1984).
19. Tareev B., “Physics of Dielectric Materials”, 2nd ed., Mir Publishers, Moscow, 67-95, 140-156 (1979).
20. Von Hippel A. R., “Dielectrics and Waves”, John Wiley & Sons, New York, 3-8, 63-122, 160-166, 228-234 (1959).
21. Chen L. F., Ong C. K. and Neo C. P. Microwave Electronics Measurement and Materials Characterization 2004
22. Barsoukov Evgenij and Macdonald J. Ross, Impedance Spectroscopy, Theory, Experiment and Applications Second Edition,2005
23. Raju G.G. Dielectrics in Electric Fields, 2003
24. Ruffet C., Gueguen Y. , and Darot M. Geophysics, Vol 56, No. 6 : P. 758-768. 10 ;1991

25. HP Basics of measuring the dielectric properties of materials Application Note 1217-1,1992
26. Bona, S., Ortenzi, A. And Capaccioli, S., 2001, Advances in Understanding The Relationship Betwen Rock Wettability And High –Frequency Dielectric Response, Journal of Petroleum Science And Engineering, vol:960.
27. McCrum, S.G., Read, B.E. and Williams, G., 1967, Anelastic and Dielectric Effects in Polymeric Solids, John Wiley, London, p.102-121.
28. Kremer F. and Schonhals A. , Broadband Dielectric Spectroscopy Springer, Berlin, 2002, p. 1-84 (1;2;3;11,12;13;17;18-28;35-98;152-159;350-380 475- 495;
29. Vakrushev S.B., Zhdanova V.V., et.al. JETP Letters, 39, 291(1984)
30. Aliev R.A.,Allakhverdiev K.R, et. al. Phys.Solid State, 26, 775 (1984)
31. Strukov, B. A. Levanyuk, A. P., Ferroelectric Ponemena in Crystals, Spring pres,1997
32. Salaev F.M., Allakhverdiev K.R., Mikailov F.A., Ferroelectrics, 131, 163 (1992)
33. Babaev S.S , Başaran E., Mamadov T. G., Mikailov F. A., Salehli F. M., MirHasan Yu Seyidov and Suleymanov R. A. :Cond.Matt., 17,(2005) 1985-1993
34. Gohost A. ,Physical Review B volum 45 number 19 sf 11318, (1992)
35. Abdullayev S.A, Mamadov T.G, Suleymanov R.A, Phys. Stat.Sol(b) 1-7(2004) /DOI 10.1002 Pssb 2004 02/26
36. Jonscher A. K. Dielektric relaxation in solids , Chelsea dielektrics pres,london,1983
37. Landaou L.D.,Lifshits E.M, Staticscial physics Oksford ,(2000)

- 38.** Havriliak Jr, Havriliak S, Dielektric relaxation in materials ,Haser Publisher, 1997
- 39.** Angel C.A.,Chem.Rev.,S.90,pp.523-542,1990
- 40.** Moynihan, C. T; Balitaclac, S. Bone Litovitz T. A. J. Phys. Chem. 3013,55,(1971)
- 41.** Macedo, D. B. Moynihan, C. T.; Bose. R. Phys. Chem. Glass 13,1971 (1972)
- 42.** Howell. F. S. ; Bose R. A. ; Macedo, D. B. Moynihan, C. T.; Phys. Chem. 78,639,(1974)
- 43.** Abdullayev S. A., Mammadov T. G., and Suleymanov R. A., Phys. Status Solidi B **242**, 983 (2005).
- 44.** Plyushch O. B. and Sheleg A. U., Crystallogr. Rep. **44**, 815 (1999).
- 45.** Ilisavskiy Yu. V., Sternin V. M., Suleymanov R. A., Seidov M. Yu., and Salaev F. M., Sov. Phys. Solid State **33**, 57 (1991)
- 46.** Suleymanov R. A., Seidov M. Yu., and Salaev F. M., Sov. Phys. Solid State **33**, 1010 (1991).
- 47.** Abdullaeva S. G., Mamedov S. T., Mamedov Sh. S., andMustafaev F. A., Inorg. Mater. **25**, 1574 (1989).
- 48.** Abdullaeva S. G., Mamedov S. T., Mamedov Sh. S., and Mustafaev F. A., Sov. Phys. Solid State **29**, 1808 (1987).
- 49.** Yamamoto S., Mamedov S., and Shinohara T., J. Cryst. Growth **237**, 2023 (2002).
- 50.** Allakhverdiev K. R., Akhmed-zade S. D., Mamedov T. G., Mamedov T. S., and Seidov M. Yu., Low Temp. Phys. **26**, 56 (2000).

51. Aliyev V. P., Babayev S. S., Mammadov T. G., Seyidov M. H. Yu., and Suleymanov R. A., *Solid State Commun.* **128**, 25 (2003).
52. Seyidov M. H. Yu., Suleymanov R. A., and Khamoev R., *Phys. Solid State* **48**, 1346 (2006).
53. Mikailov F A, Basaran E, Tumbek L, Senturk E and Mammadov T G J. *Non-Crystal. Solids* 351 2809 ,2005
54. Kyeong A Y and Albright T A *J. Am. Chem. Soc.* 113 6474 (1991)
55. Suleymanov R A, Seyidov M-H Yu and Salaev F M 1993 *Sov. Phys.—Solid State* **35** 3324
56. Banis Yu, Brilingas A, Grigas Y and Guseynov G 1987 *Sov. Phys.—Solid State* **29** 3483
57. Senturk E, Tumbek L, Salehli F and Mikailov F 2005 *Cryst. Res. Technol.* **40** 248
58. Yee K. A. and Albright T. A., *J. Am. Chem. Soc.* **113**, 6474 (1991).
59. Hochheimer H. D., Gmelin E., Bauhofer W., von Schnering-Schwarz Ch., von Schnering H. G., Ihringer J., and Appel W., *Z. Phys. B: Condens. Matter* **73**, 257 (1988)
60. Panich A. M. and Kashida S., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 395211(2008).
61. Panich A. M., *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 293202 (2008).
62. Kashida S. and Kobayashi Y., *J. Korean Phys. Soc.* **32**, S40 (1998).
63. Seyidov M.H. Yu. and Suleymanov R. A., *Phys. Solid State* **50**, 1219(2008).

64. Seyidov M. Y., Sahin Y., Aslan M. H., and Suleymanov R. A., *Semicond. Sci. Technol.* **21**, 1633 (2006).
65. Seyidov M. Yu., Sahin Y., Erbahar D., and Suleymanov R. A., *Phys. Status Solidi A* **203**, 3781 (2006).
66. Agladze S. I., Antanyuk B. P., Burlakov V. M., Vinogradov E. A., and Zhizhin G S., *Sov. Phys. Solid State* **23**, 1911 (1981).
67. Seyidov M. H. Yu. and Suleymanov R. A., *Phys. Solid State* **50**, 219 (2008).
68. Salehli F., Bakiş Y., Seyidov M. H. Yu., and Suleymanov R. A., *Semicond. Sci. Technol.* **22**, 843 (2007).
69. Jonscher A. K., *Dielectric Relaxation in Solids* _Chelsea Dielectrics, London,(1983).
70. Jonscher A. K., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **32**, R57 (1999).
71. Vogel H *Phys. Z.* **22** 645,1921
72. Fulcher G S *J. Am. Ceram. Soc.* **8** 339,1925
73. Tagantsev A K *Phys. Rev. Lett.* **72** 1100,1994
74. Jonscher A. K., Picup C., and Zaidi S. H., *Semicond. Sci. Technol.* **1**, 71 (1986).
75. Seyidov M-H Yu, Sahin Y and Suleymanov R A *Phys. Status Solidi a* **204** at pres, 2007
76. Boer K W 1965 *Phys. Rev. A* **139**,1949
77. Boer K W 1969 *IBM J. Res. Dev.* **Sept.** 573

- 78.** Neumann A J. Appl. Phys. 90 1,2001
- 79.** Willing B and Maan J C Phys. Rev. B 49 13995,1994
- 80.** Piazza F, Christianen P C and Maan J C Phys. Rev. B 55 15591,1997
- 81.** Kahn A M, Mar D J and Westervelt R M 1991 Phys. Rev. B 43 9740
- 82.** Scholl E 2001 Nonlinear Spatio-Temporal Dynamics and Chaos in Semiconductors (Cambridge: Cambridge University Press)
- 83.** Scholl E 1987 Nonequilibrium Phase Transitions i Semiconductors (Berlin: Springer)
- 84.** Aoki K 2001 Nonlinear Dynamics and Chaos in Semiconductors (Bristol: Institute of Physics Publishing)
- 85.** Wang C. C. and Dou S. X., Solid State Commun. 149, 2017 (2009).
- 86.** Jonscher A. K. and Pickup C., J. Phys. C **18**, L343 (1985).
- 87.** Seyidov M. H. Y. and Suleymanov R. A., J. Appl. Phys. 108, 063540 (2010).
- 88.** Belenkii G. L. and Stopachinskii V. B., Sov. Phys. Usp. 140, 233 (1983).
- 89.** Wilson A. H., Proc. R. Soc. London, Ser. A **136**, 487 (1932).
- 90.** Dilworth C. C., Proc. Phys. Soc. London **60**, 315 (1948).
- 91.** Seyidov M.H. Yu. and Suleymanov R. A. , Phys. Solid State 50, 1219 (2008).
- 92.** Seyidov M-H Yu, Suleymanov R A and Bakış Y., Journal of Applied Physics 105, 043710 (2009)

93. Seyidov M-H Yu, Suleymanov R. A., Bakış Y. and Salehli F. Journal of Applied Physics 108, 074114 (2010).

94. Henkel W., Hochheimer H. D., Carlone C., Werner A., Ves S., and Schnering H. G. v., PHYSICAL REVIEW B, VOLUME 26, NUMBER 6, 3221, (1982)

ÖZGEÇMİŞ

1971 yılında Erzurum'da doğdu. İlk ve orta öğrenimini İstanbul Sarıyer'de, Zekeriya Köy ilkokulu ve Sarıyer ortaokulu, Lise eğitimini Avcılar E.M.L de tamamladı.

1992' de 9 Eylül Üniversitesi Matematik bölümünden iki yıl İngilizce hazırlık okuduktan sonra 2.sınıftan 1995'te İstanbul Üniversitesi Fizik bölümüne geçerek 1998 yılında lisans eğitimini tamamladı.

Mezun olduktan sonra çeşitli dershanelerde fizik ve matematik öğretmenliği yaptı. 2002 yılında Marmara Üniversitesi Eğitim Bilimleri Fizik Bölümünde tezsiz yüksek lisansını bitirdi. 2002 yılında Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsün Fizik Bölümünde Yüksek Lisans başladı ve 2005 de tamamladı.

2006 da Prof. Dr. Rauf SÜLEYMENLİ' nin yürütücülüğünde UV detektör yapımın konulu Tubitak projesinde 3 yıl çalıştı. 2010 da Fatih Üniversitesi BiyoNanoTeknoloji Merkezinde Uzman olarak göreve başladı. Gebze Yüksek Teknoloji enstitüsünde doktorasını tamamlamak üzere olan Yakup bakış evli ve iki çocuk babasıdır.

Yayımlar:

1. Salehli F., Bakış Y., Seyidov M. H. Yu., and Suleymanov R. A., Semicond. Sci. Technol. **22**, 843 (2007).
2. Seyidov M-H Yu, Suleymanov R A and Bakış Y., Journal of Applied Physics 105, 043710 (2009)
3. Seyidov M-H Yu, Suleymanov R. A., Bakış Y. and Salehli F. Journal of Applied Physics 108, 074114 (2010).